# Messung differentieller Wirkungsquerschnitte für Umladungen in den Systemen $He^+$, $Ne^+$, $Ar^+$ mit Kr bei niedrigen Stoßenergien

DISSERTATION
zur
Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
der
Abteilung für Physik und Astronomie
an der Ruhr-Universität Bochum

von
Bernd Huber
Eggenstein

Bochum 1975

# MESSUNG DIFFERENTIELLER WIRKUNGSQUERSCHNITTE FÜR UMLADUNGEN IN DEN SYSTEMEN $He^+$, $Ne^+$, $Ar^+$ MIT Kr BEI NIEDRIGEN STOSSENERGIEN

DISSERTATION
zur
Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
der
Abteilung für Physik und Astronomie
an der Ruhr-Universität Bochum

von
Bernd Huber
Eggenstein

Bochum 1975

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

Dissertation eingereicht am 17.1.75

Tag der mündlichen Prüfung 5.2.75

Referent: Prof. Dr. K. Wiesemann

Korreferent: Prof. Dr. H.v. Buttlar

Inhaltsverzeichnis


| | | |
|---|---|---|
| 1. | Einleitung | 1 |
| 2. | Theoretische Grundlagen | 5 |
| 2.1. | Klassische Betrachtungsweise des Umladungsprozesses | 5 |
| 2.2. | Das adiabatische Kriterium | 7 |
| 2.3. | Modell der Kurvenkreuzungen | 9 |
| 2.4. | Information über Stoßprozesse aus dem Energie- und Impulssatz - Newtondiagramme | 16 |
| 3. | Beschreibung der Meßapparatur | 26 |
| 3.1. | Erzeugung des Primärstrahls | 27 |
| 3.1.1. | Ionenquelle | 27 |
| 3.1.2. | Energieeinstellung des Primärstrahls | 29 |
| 3.1.3. | Untersuchung der Primärstrahleigenschaften | 31 |
| 3.2. | Stoßzellenbereich | 36 |
| 3.3. | Nachweissystem für sekundäre Ionen | 39 |
| 3.3.1. | Winkelanalyse | 40 |
| 3.3.2. | Energieanalyse | 41 |
| 3.3.3. | Massenanalyse | 48 |
| 3.3.4. | Registrierung der Ionen | 50 |
| 3.4. | Mechanischer Gesamtaufbau | 51 |
| 4. | Durchführung der Messungen | 55 |
| 5. | Testmessungen | 58 |
| 5.1. | Streuung von $He^+$-Ionen an Ne-Atomen | 58 |
| 5.2. | Elastische Streuung von $Ar^+$ an Ar | 59 |
| 5.3. | Atomaustauschreaktion: $Ar^+ + H_2 \rightarrow ArH^+ + H$ | 62 |
| 6. | Diskussion der Umladungsmessungen | 66 |
| 6.1. | Energieverteilung der $Kr^+$-Ionen | 67 |
| 6.2. | Abhängigkeit der Energieverteilung von der Stoßenergie $E_{kl}$ und dem Nachweiswinkel $\theta$ | 74 |
| 6.3. | Differentielle Wirkungsquerschnitte | 80 |
| 6.4. | Transformation von $\sigma_D$ ins Schwerpunktsystem | 86 |

6.5. Energieabhängigkeit der Bildung schneller $Kr^+$-Ionen 89

6.6. Energie- und Winkelverteilung zweifach geladener Kr-Ionen 94

7. Zusammenfassung 99

8. Anhang 101

Stoßinduzierte Dissoziation von molekularen Edelgasionen

Referenzen 107

## 1. Einleitung

Unter dem Prozeß der Umladung versteht man den Austausch eines oder mehrerer Elektronen beim Stoß zweier Atome oder Moleküle in beliebigen Ladungszuständen. Wir wollen uns im folgenden hauptsächlich auf den Austausch eines Elektrons beim Stoß eines atomaren positiven Ions mit einem neutralen Atom beschränken. Diese Reaktion läßt sich folgendermaßen darstellen:

$$X^+ + Y \rightarrow Y^+ + X + Q \ .$$

Hierin dienen X und Y als Symbole für die beteiligten Stoßpartner, Q gibt die Änderung der inneren Energie der Atome beim Stoß an (Wärmetönung der Reaktion).

Die ersten experimentellen Untersuchungen dieser Prozesse wurden 1922 von Henderson (Ref. 1) und später von Rutherford (Ref. 2) sowie von Kapitza (Ref. 3) mit α-Teilchen aus radioaktiven Quellen durchgeführt. 1930 untersuchten Kallmann und Rosen (Ref. 4) die Transmission von $N_2^+$, $N^+$, $Ar^+$ und $Ar^{++}$-Ionen in den Gasen $N_2$ und Ar. Sämtliche experimentellen Ergebnisse ließen sich durch Umladungsprozesse erklären, unter der Annahme, daß keine nennenswerte kinetische Energie vom schnellen Primärion $X^+$ auf das Targetmolekel Y übertragen wird. In den folgenden Jahrzehnten wurde eine große Anzahl von Untersuchungen durchgeführt, die sich im wesentlichen jedoch auf Stoßenergien im keV-Bereich und darüber beschränkten. Dabei zeigten differentielle Messungen von Fedorenko (Ref. 5) sowie von Everhart et al. (Ref. 6), daß bei Stoßgeschwindigkeiten > $10^8$ cm/s ein sehr kleiner Teil der Umladungsreaktionen auch mit Impulsübertrag erfolgen kann. Jedoch wird der größte Anteil der Umladungsionen unter Winkeln um $90^\circ$ (im Laborsystem) gebildet und besitzt somit keine nennenswerte kinetische Energie (Ref. 7).

Erst innerhalb der letzten zehn Jahre wurden zuverlässige Messungen bei kleinen Stoßenergien (< 100 eV) durchgeführt; in den meisten Fällen wurden totale Wirkungsquerschnitte für Umladungsprozesse bestimmt (s. Ref. 8 - 12), wobei jedoch nur die langsamen Produkt-Ionen zur Messung gelangten. Erst eine Messung differentieller Umladungsquerschnitte von Champion und Doverspike (Ref. 13) zeigte, daß im System ($He^+$ + Ar) ein nennenswerter Anteil der Umladung mit Impulsübertrag erfolgt (Stoßenergie 94 eV im Laborsystem).

Um eine bessere Einsicht in die Dynamik von umladenden Stößen bei niedrigen Energien zu erlangen, erschien es daher als wünschenswert, die Impulsübertragung auch an anderen Systemen zu untersuchen, zumal die Messung der differentiellen Wirkungsquerschnitte auch Aussagen über den elektronischen Zustand der Produktteilchen nach dem Stoß ermöglicht. Für die meisten Systeme besteht eine detaillierte Information darüber zur Zeit nicht.

In der vorliegenden Arbeit wird über Untersuchungen von Umladungsreaktionen beim Stoß von einfach geladenen, positiven Edelgasionen $He^+$, $Ne^+$ und $Ar^+$ mit dem Targetgas Kr im Energiebereich von einigen eV bis ca. 500 eV berichtet.

Die untersuchten Prozesse können sowohl exotherm als auch endotherm ablaufen, je nachdem, welchen elektronischen Zustand die Teilchen nach dem Stoß haben. Es wird angenommen, daß sich beide Teilchen vor dem Stoß im Grundzustand befinden. Liegt keine Anregung der Produktteilchen vor, so erfolgt die Reaktion exotherm, d. h. innere Energie wird beim Stoß in kinetische Energie überführt:

$$He^+(^2S) + Kr(^1S_o) \rightarrow Kr^+(^2P_{1/2}) + He(^1S_o) + 11{,}6\ eV$$

$$Ne^+(^2P) + Kr(^1S_o) \rightarrow Kr^+(^2P_{1/2}) + Ne(^1S_o) + 7{,}56\ eV$$

$$Ar^+(^2P) + Kr(^1S_o) \rightarrow Kr^+(^2P_{1/2}) + Ar(^1S_o) + 1{,}76\ eV$$

Befindet sich eines der beiden Produktteilchen in einem angeregten Zustand, so verhält sich der entsprechende Reaktionskanal endotherm, weil die niedrigsten Anregungsniveaus energetisch höher liegen als es der Energie der Wärmetönung entspricht. Zum Ablauf dieser Prozesse ist eine Mindestenergie notwendig, so daß bei niedrigen primären Stoßenergien ein Schwellenverhalten zu erwarten ist.

Die optischen Untersuchungen der Lichtemission bei Umladungsstößen (s. Ref. 14 - 17) zeigen in den vorliegenden Systemen eine Vielzahl von $Kr^+$-Ionenlinien, was auf die Bedeutung der endothermen Kanäle hinweist. Bei vielen Linien wurde eine Schwelle für den Emissionswirkungsquerschnitt gefunden. Die Messungen von totalen Wirkungsquerschnitten dagegen lieferten nahezu konstante Werte bei niedrigen Stoßenergien (Ref. 10, 18), selbst beim Überschreiten der Schwellenenergien wurde im Verlauf des Wirkungsquerschnittes keine Struktur gefunden. Dieses Ergebnis ist umso überraschender, als ein Vergleich der Emissionsquerschnitte mit den totalen Wirkungsquerschnitten einen Anteil der endothermen Kanäle zwischen 10 und 30 % ergibt. Auch neuere Messungen von Schrey (Ref. 18) im Schwellenbereich des Systems ($Ar^+$ + Kr) konnten diese Diskrepanz nicht klären.

Im folgenden soll zunächst ein kurzer Überblick über die theoretischen Grundlagen von Umladungsreaktionen gegeben werden, bevor in den anschließenden Abschnitten eine Beschreibung des Experimentes sowie der Testmessungen vorgenommen und eine Diskussion der Meßergebnisse durchgeführt wird.

Im Anhang wird die stoßinduzierte Dissoziation von molekularen Edelgasionen am Targetgas Kr diskutiert. Die Untersuchung dieser Prozesse:

$$X_2^+ + Kr \rightarrow X^+ + X + Kr \quad \text{mit} \quad X = He, Ne, Ar$$

hatte sich angeboten, nachdem im Primärstrahl geringe Anteile (<1 %) von molekularen Ionen festgestellt wurden und eine Messung der Energie- und Winkelverteilung der Produkt-Ionen möglich war.

## 2. Theoretische Grundlagen

### 2.1. Klassische Betrachtungsweise des Umladungsprozesses

Wie bereits in Kapitel 1 erwähnt, erfolgt der Umladungsprozeß durch den Austausch eines Elektrons, wobei wenig kinetische Energie übertragen wird. Es handelt sich somit um einen streifenden Stoß, der mit einem relativ großen Stoßparameter erfolgt (Ref. 19, 20). Zur Beschreibung eines solchen Prozesses existieren besonders im Bereich hoher Energien - wenn man von den dort möglichen zentralen Stößen (kleiner Stoßparameter $\rho$) absieht - klassische Modelle von Thomas (Ref. 21) und Gryzinski (Ref. 22), die befriedigende Resultate für die einfachsten Systeme wie z. B. $H^+ + H(1s) \rightarrow H(1s) + H^+$ ergeben. In diesen Modellen wird der Dreierstoß zwischen den beiden Kernen sowie dem Elektron ersetzt durch zwei bzw. einen Zweierstoß zwischen einem Kern und dem Elektron. Die klassischen Bahnen mit verschiedenen Positionen der einzelnen Teilchen sind in Fig. 1 entsprechend dem Thomas-Modell dargestellt.

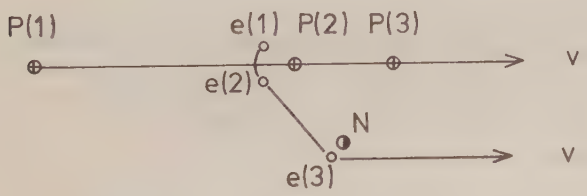



Fig. 1: *Klassische Bahnen beim Umladungsprozeß nach dem Thomas-Modell*

Hierin bedeuten:
e = Elektron, P = einfallendes Proton, N = Kern, an den das Elektron zunächst gebunden ist. Gleiche Indizes geben die Stellung zur gleichen Zeit an.

Damit eine Umladung erfolgt, muß im ersten Zweierstoß zwischen dem einfallenden Proton und dem Elektron ein solcher Impuls auf das Elektron übertragen werden, daß dieses die richtige Geschwindigkeit und den richtigen Stoßparameter besitzt, um am Kern N ein zweites Mal geeignet gestreut werden zu können. Das bedeutet, nach dem zweiten Stoß muß das Elektron über einen ähnlichen Geschwindigkeitsvektor wie das gestreute Primärteilchen verfügen, die Relativgeschwindigkeit beider Teilchen muß kleiner sein als die Fluchtgeschwindigkeit $v_F$ des Elektrons bezüglich P als Bezugskern. Hierbei bedeutet $v_F$ die Elektronengeschwindigkeit, die notwendig ist, um das effektive Feld eines Atoms (hier von P) verlassen zu können. Damit dieses Modell den Prozeß vernünftig beschreibt, ist es einerseits notwendig, daß der Stoßparameter zwischen dem einfallenden Kern und dem Elektron wesentlich kleiner ist als der Abstand zwischen Elektron und eigenem Kern N. Zum anderen muß die Elektronengeschwindigkeit wesentlich kleiner sein als die Geschwindigkeit des einfallenden Teilchens.

Diese klassische Betrachtung liefert für die Umladung von Protonen an Wasserstoffatomen dieselbe Geschwindigkeitsabhängigkeit sowie nahezu den gleichen numerischen Koeffizienten wie drei verschiedene quantenmechanische Berechnungen dieses Prozesses (Ref. 23, 24).

Obwohl dieses einfache Modell für komplexere Systeme und kleinere Stoßenergien nicht mehr anwendbar ist, erlaubt es die Abschätzung der beim Ladungsaustausch übertragenen Energie. Die Streuung des primären Ions erfolgt lediglich am Elektron, für den maximalen Streuwinkel erhält man einen Wert, der ungefähr dem Massenverhältnis beider Teilchen entspricht (Ref. 25):

$$\theta_{max} \approx \sin \theta_{max} = m_{el}/m_{Ion} \cdot$$

Die Energie des Primärteilchens wird kaum verändert; die relative Änderung ist proportional $2\, m_{el}/m_{Ion}$.

## 2.2. Das adiabatische Kriterium

Beim Übergang zu niedrigen Stoßenergien ist eine klassische Beschreibung von Umladungsprozessen nicht mehr möglich, eine quantenmechanische Rechnung muß durchgeführt werden. Dabei ist zu beachten, daß der Energiedefekt Q der Reaktion immer mehr an Bedeutung gewinnt.

Der symmetrische Ladungsaustausch zwischen zwei gleichen Stoßpartnern, dessen Energiedefekt im Resonanzfall verschwindet, soll hier nicht weiter beschrieben werden, da die anschließenden Messungen an asymmetrischen Systemen durchgeführt wurden. Eine theoretische Behandlung dieser symmetrischen Prozesse ist leichter möglich, auch für komplexere Systeme (s. z. B. Ref. 26); es ergibt sich ein Ansteigen des Wirkungsquerschnittes mit abnehmender Energie, was durch das Experiment bis zu sehr niedrigen Energien (einige eV) bestätigt werden konnte.

In den asymmetrischen Systemen ( $Q \neq 0$ ) ist die Betrachtungsweise weit schwieriger, allerdings lassen sich einige Aussagen aus dem sogenannten "adiabatischen Kriterium" gewinnen, welches 1949 von Massey vorgeschlagen wurde (Ref. 27).

Betrachten wir den asymmetrischen Prozeß:

$$X^+ + Y \rightarrow Y^+ + X + Q \ ,$$

so entspricht die Größe Q, wenn man von elektronischer Anregung der Teilchen absieht, der Differenz in den Ionisierungsenergien beider Teilchen X und Y. Massey benutzte das Korrespondenzprinzip, um zu zeigen, daß der Wirkungsquerschnitt der obigen Reaktion bei kleinen Stoßenergien ($\lesssim$ 1 keV) extrem niedrig sein wird, wenn nicht gerade Q auch einen sehr kleinen Wert besitzt. Ist die Relativgeschwindigkeit der beiden Stoßpartner klein gegenüber der Umlaufgeschwindigkeit des auszutauschenden Elektrons, so ist die zeitliche Änderung der Wechselwirkung zwischen $X^+$ und Y

so gering, daß eine Anpassung der Elektronen an die Störung möglich ist. Der Stoß erfolgt adiabatisch, ein Elektronenaustausch ist sehr unwahrscheinlich. Massey beschreibt diesen Tatbestand klassisch mit einem Oszillator der Frequenz $\nu_o$, der durch eine zeitlich veränderliche Kraft angeregt wird. Nur Frequenzen in der Umgebung von $\nu_o$ führen zu einer verstärkten Oszillation. Bedeutet $\tau$ die Stoßzeit, so ist der adiabatische Bereich begrenzt durch die Bedingung $\nu_o\tau >> 1$. Im Falle $\nu_o\tau \approx 1$ ist der stärkste Einfluß zu erwarten. Beim Übergang zum vorliegenden Stoßprozeß wird die Frequenz $\nu_o$ durch Q/h und die Stoßzeit $\tau$ durch a/v ersetzt. Hierbei bedeuten h das Planck'sche Wirkungsquantum, v die Relativgeschwindigkeit der beiden Kerne und a den adiabatischen Parameter, der ein Maß für den Wechselwirkungsbereich darstellt. Damit erhalten wir folgende Aussage:
Der Wirkungsquerschnitt für Umladungsprozesse wird sehr klein sein, wenn die Beziehung gilt: $a \cdot Q/v \cdot h >> 1$. Wird die Relativgeschwindigkeit erhöht, so wird der Stoß nicht mehr adiabatisch erfolgen, wenn v folgenden Wert erreicht: $v \approx a \cdot Q/h$. In diesem Fall ist die Stoßzeit vergleichbar mit der Übergangszeit h/Q. Man erwartet jetzt einen maximalen Wirkungsquerschnitt. Wird die Geschwindigkeit weiter erhöht, so wird die Stoßzeit zu kurz für einen Übergang, so daß der Wirkungsquerschnitt wieder abnimmt.

Mit dieser einfachen Betrachtung konnte eine große Anzahl von Umladungsmessungen im keV-Bereich erklärt werden, wobei sich für den adiabatischen Parameter a stets ein Wert von 7 Å mit einer Toleranz von $\pm$ 20 % ergab (Ref. 19).

Wird diese Hypothese auf die in der vorliegenden Arbeit behandelten Systeme angewandt, so kann man maximale Wirkungsquerschnitte für die verschiedenen Reaktionskanäle im keV-Bereich erwarten. Bei Stoßenergien unter 500 eV sollte der Wirkungsquerschnitt sämtlicher Kanäle sehr niedrig sein, insbesondere sollten die stark endothermen Reaktionen mit Q-Werten > 10 eV keine Rolle spielen (Ref. 28).

## 2.3. Modell der Kurvenkreuzungen

In der soeben beschriebenen Hypothese wurde als wesentlicher Parameter der Energiedefekt Q angesehen, der bei so großem Abstand R der Kerne bestimmt wird, daß keine Wechselwirkung zwischen beiden Stoßpartnern mehr vorliegt. Geht man zu Stoßenergien über, die vergleichbar mit Q oder nur wenig größer als Q sind, so muß man die Tatsache berücksichtigen, daß Q eine Funktion vom Kernabstand R ist. In diesem Energiebereich bilden das einfallende Ion zusammen mit dem Targetatom während des Stoßes ein Quasimolekül, welches durch verschiedene Wellenfunktionen und Potentialkurven quantenmechanisch beschrieben werden kann. Da jedoch meist keine Kenntnis über diese Größen bei etwas komplizierteren Systemen vorliegt, ist eine solche Betrachtungsweise kaum erfolgversprechend durchzuführen. Eine Beschreibung dieser Methoden wird z. B. von Mott und Massey (Ref. 29) sowie von Mapleton (Ref. 30) gegeben.

Das im folgenden kurz umrissene Modell der Kreuzung von Potentialkurven (Pseudocrossing), welches eine Zweizustandsnäherung darstellt, ist insofern eine halbklassische Näherung, als die Kernbewegung klassisch, das Quasimolekül dagegen bei festen Kernabständen R quantenmechanisch beschrieben wird. Entwickelt wurde dieses Modell von Landau, Zener und Stückelberg (Ref. 31 - 33), kritische Analysen wurden von Bates und Heinrichs (Ref. 34, 35) durchgeführt.

Betrachten wir den Elektronenaustausch vom Zustand n des Atoms Y zum Zustand m des Atoms X:

$$X^+ + (Y^+ + e^-)_n \rightarrow Y^+ + (X^+ + e^-)_m \; . \qquad (1)$$

$\bar{R}$ sei der relative Ortsvektor der beiden Kerne, $\bar{r}$ der Ortsvektor des auszutauschenden Elektrons bezogen auf den Mittelpunkt der Kernverbindungsachse. $\psi_n(\bar{r}, \bar{R})$ und $\varepsilon_n(R)$ seien die

exakten elektronischen Eigenfunktionen und Eigenwerte des Quasimoleküls, das gebildet wird, wenn sich die Stoßpartner der linken Seite der Reaktionsgleichung (1) von sehr großen R-Werten annähern. $\psi_m(\bar{r}, \bar{R})$ und $\varepsilon_m(R)$ seien die entsprechenden Größen für die rechte Seite der Gleichung. In dem Modell wird angenommen, daß bei einem Kernabstand $R_K$ ein Pseudokreuzungspunkt vorliegt, der verbunden ist mit einer Änderung der Form der Eigenfunktionen. Das bedeutet für $R >> R_K$ beschreiben $\psi_n(\bar{r}, \bar{R})$ und $\psi_m(\bar{r}, \bar{R})$ das System $X^+ + (Y^+ + e^-)_n$ bzw. $Y^+ + (X^+ + e^-)_m$, im Falle $R << R_K$ entsprechen die Funktionen $\psi_n(\bar{r}, \bar{R})$ und $\psi_m(\bar{r}, \bar{R})$ den vertauschten Systemen, also $Y^+ + (X^+ + e^-)_m$ bzw. $X^+ + (Y^+ + e^-)_n$.

Es ist möglich, durch eine Linearkombination von $\psi_n(\bar{r}, \bar{R})$ und $\psi_m(\bar{r}, \bar{R})$ zwei orthogonale Funktionen $\phi_n(\bar{r}, \bar{R})$ und $\phi_m(\bar{r}, \bar{R})$ zu erzeugen, die für alle R-Werte jeweils eine Seite der obigen Reaktionsgleichung beschreiben. Ist H der Hamiltonoperator, so gelten folgende Beziehungen:

$$H\,\psi_n(\bar{r}, \bar{R}) = \varepsilon_n(R)\,\psi_n(\bar{r}, \bar{R}) \tag{2}$$

$$H\,\psi_m(\bar{r}, \bar{R}) = \varepsilon_m(R)\,\psi_m(\bar{r}, \bar{R}) \tag{3}$$

$$H\,\phi_n(\bar{r}, \bar{R}) = h_{nn}(R)\,\phi_n(\bar{r}, \bar{R}) + h_{mn}(R)\cdot\phi_m(\bar{r}, \bar{R}) \tag{4}$$

$$H\,\phi_m(\bar{r}, \bar{R}) = h_{nm}(R)\,\phi_n(\bar{r}, \bar{R}) + h_{mm}(R)\cdot\phi_m(r, R), \tag{5}$$

wobei

$$h_{pq}(R) = \int \phi_p^*(\bar{r}, \bar{R})\, H\, \phi_q(\bar{r}, \bar{R})\, d^3r \tag{6}$$

ist.

Die Größen $\varepsilon_n$, $\varepsilon_m$, $h_{nn}$ und $h_{mm}$ sind in Fig. 2 in Abhängigkeit von dem Kernabstand R aufgetragen. Es zeigt sich, daß für $R = R_K$ ein Kreuzungspunkt der diabatischen Kurven vorliegt:

$$h_{nn}(R_K) = h_{mm}(R_K)\ . \tag{7}$$

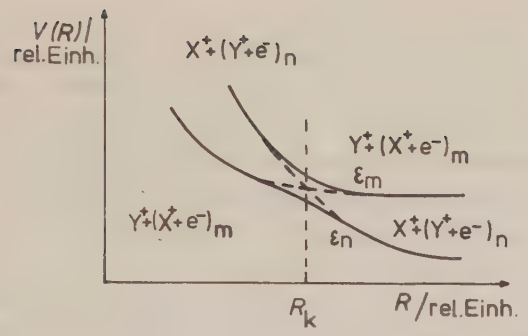



Fig. 2: *Schematische Darstellung zweier Potentialkurven mit einem Pseudokreuzungspunkt beim Kernabstand $R_K$. Die durchgezogenen Kurven geben die Energieeigenwerte der exakten Zustände, die gestrichelten Kurven $h_{nn}$ und $h_{mm}$ die Eigenwerte bei Kurvenkreuzung an.*

Die Kurven $\varepsilon_n(R)$ sowie $\varepsilon_m(R)$ weisen für $R = R_K$ einen minimalen Abstand auf, wobei gilt

$$\varepsilon_m(R_K) - \varepsilon_n(R_K) = 2|h_{nm}(R_K)| \quad . \tag{8}$$

Ob beim Annähern zweier Potentialkurven ein Kreuzungspunkt oder nur ein Pseudocrossing entsteht, hängt von $h_{nm}(R)$ und damit von den Symmetrieeigenschaften der Eigenfunktionen ab (Ref. 36).

Im Modell von Landau und Zener wird angenommen, daß ein Übergang zwischen den Potentialkurven nur am Kreuzungspunkt $R_K$ mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit P möglich ist. Im klassischen Bild wird der Kreuzungspunkt beim Stoß

zweimal durchlaufen, so daß sich für die gesamte Übergangswahrscheinlichkeit folgender Wert ergibt:

$$P_G = 2\,P\,(1 - P)\ . \tag{9}$$

Es gilt also, die Übergangswahrscheinlichkeit P am Kreuzungspunkt zu berechnen. Im folgenden wird angenommen, daß die Stoßenergie im Schwerpunktsystem (Zusatzindex o) wesentlich größer ist als die Wechselwirkungsenergie

$$E_o >> 2|h_{nm}\,(R_K)|\ . \tag{10}$$

Die elektronische Wellenfunktion des stoßenden Systems läßt sich annähernd darstellen als Linearkombination der Funktionen $\Phi_n$ und $\Phi_m$,

$$\Psi = c_n(t)\ \Phi_n + c_m(t)\ \Phi_m\ , \tag{11}$$

hierin sind die Koeffizienten $c_n$ und $c_m$ zeitabhängig. Wird diese Gesamtwellenfunktion in die zeitabhängige Schrödingergleichung eingesetzt und dabei eine geeignete Form der Funktionen $\Phi$ verwendet (s. Ref. 34), so erhält man, wenn man sich auf niedrige Stoßenergien beschränkt, zwei gekoppelte Differentialgleichungen für die zeitabhängigen Koeffizienten $c_n(t)$ und $c_m(t)$:

$$\begin{aligned} i\hbar\,\frac{d\,c_n(t)}{dt} &= c_m(t)\ h_{nm}\ \exp\{-\tfrac{i}{\hbar}\textstyle\int^t (h_{mm} - h_{nn})\,dt'\} \\ i\hbar\,\frac{d\,c_m(t)}{dt} &= c_n(t)\ h_{mn}\ \exp\{-\tfrac{i}{\hbar}\textstyle\int^t (h_{nn} - h_{mm})\,dt'\} \end{aligned} \tag{12}$$

Dieses Gleichungssystem muß für den Stoßprozeß unter folgenden Randbedingungen gelöst werden:

$$c_n(-\infty) = 1;\quad c_m(-\infty) = 0\ . \tag{13}$$

Eine analytische Lösung ist möglich, wenn für den Übergang nur ein enger Bereich um $R_K$ zulässig ist; dann können folgende Annahmen gemacht werden:

$$\text{1.)}\ h_{nn} - h_{mm} = \alpha(Z - Z_K) \text{ mit } Z = \bar{R}\cdot\hat{\bar{v}},\ Z_K = \bar{R}_K\cdot\hat{\bar{v}},$$
$$\hat{\bar{v}} = \text{Einheitsvektor der Relativgeschwindigkeit der Kerne;} \qquad (14)$$
$$\text{2.)}\ h_{nm} = h_{mn} = \beta = \text{konstant.}$$

Nachdem $c_n(t)$ aus den Gleichungen (12) eliminiert und die Näherungen (14) verwendet worden sind, erhält man für $c_m(t)$ eine Differentialgleichung in Form der Webergleichung. Aus dem asymptotischen Verhalten der Lösungen (Weberfunktionen) läßt sich die Landau-Zener-Formel für die Übergangswahrscheinlichkeit P gewinnen:

$$P = 1 - |c_m(\infty)|^2 = \exp\{\frac{-4\pi^2\beta^2}{hv|h'_{nn} - h'_{mm}|}\} = \exp\{-\frac{v^*}{v}\}. \qquad (15)$$

Die gestrichelten Größen sind bezüglich Z zu differenzieren, die Werte müssen für $R = R_K$ eingesetzt werden. Die Gesamtübergangswahrscheinlichkeit nach Gl. (9) ist in Fig. 3 über der Größe $v^*/v$ dargestellt (durchgezogene Linie). Die Landau-Zener-Formel zeigt, daß auch bei sehr niedrigen Geschwindigkeiten eine hohe Wahrscheinlichkeit für einen Elektroneneinfang möglich ist.

Die Schwächen dieses Modells liegen im wesentlichen darin, daß nur ein sehr schmaler Übergangsbereich angenommen wird; nur in diesem Falle gelten die gemachten Näherungen (14). Der Einfluß der Breite der Übergangszone auf den Kurvenverlauf wird eingehend in Ref. 34, 35 diskutiert. Von Heinrichs wird eine Übergangsbreite $\Delta R \approx 2s\beta/\alpha$ eingeführt, wobei s eine Zahl der Größenordnung von $\approx 1$ ist. Für verschiedene s-Werte ist der veränderte Kuvenverlauf in Fig. 3 mit eingezeichnet. Eine weitere Einschränkung des Modells liegt darin, daß nur s-s-Übergänge sehr gut beschrieben werden.

Sind andere Atomzustände am Übergang beteiligt, so ist eine größere Anzahl von Quasimolekülzuständen möglich, so daß Abweichungen von der Landau-Zener-Formel auftreten können.

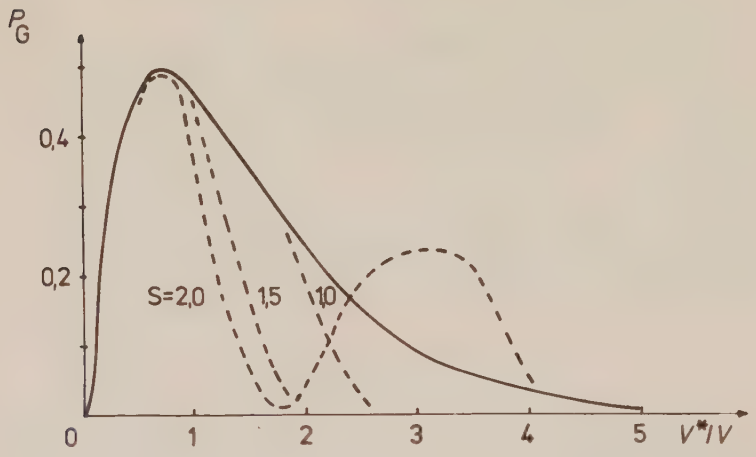



Fig. 3: *Abhängigkeit der Übergangswahrscheinlichkeit $P_G$ vom Reziproken der Relativgeschwindigkeit v (durchgezogene Linie). Bei den gestrichelten Kurven wird durch den Parameter s die endliche Breite der Übergangszone berücksichtigt (Ref. 35).*

Bei der Bestimmung des Wirkungsquerschnittes $\sigma$ für Elektronenaustauschprozesse muß man über sämtliche Stoßparameter $\rho$ integrieren, da die Radialkomponente der Relativgeschwindigkeit $v_r$ am Kreuzungspunkt von $\rho$ abhängt. Es gilt

$$\sigma(v) = \int_0^{R_k} 4\pi\rho\, P(\rho)\,(1-P(\rho))\,d\rho \quad . \qquad (16)$$

Wird in Gl. (15) die Größe $|h_{nn}-h_{mm}|$ bezüglich R differenziert, so ist dort näherungsweise v durch $v_r$ zu ersetzen. Der Stoßprozeß ist in Fig. 4 verdeutlicht.

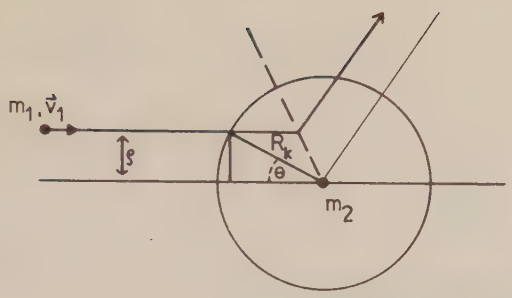



Fig. 4: *Vereinfachte Bahndarstellung des Stoßprozesses zur Kennzeichnung des Zusammenhanges zwischen Stoßparameter ρ und der Radialkomponente der Relativgeschwindigkeit am Kreuzungspunkt.*

Unter den angegebenen Bezeichnungen gilt:

$$\begin{aligned} v_r &= v_1 \cos\theta, \quad v_1 = \text{Anfangsgeschwindigkeit von } m_1 \\ \rho &= R_K \sin\theta, \\ d\rho &= R_K \cos\theta \, d\theta \ . \end{aligned} \tag{17}$$

Wird (17) in (16) eingesetzt, so ergibt sich:

$$\sigma(v_1) = 4\pi R_K^2 \int_0^{\pi/2} \sin\theta\cos\theta \left[e^{-\frac{v^*}{v_1\cos\theta}} \left(1-e^{-\frac{v^*}{v_1\cos\theta}}\right)\right] d\theta. \tag{18}$$

Ersetzt man $\frac{v^*}{v}$ durch $\varkappa$, sowie $\cos\theta$ durch x, so folgt:

$$\sigma(v_1) = 4\pi R_K^2 \int_0^1 x \left[e^{-\varkappa/x} - e^{-2\varkappa/x}\right] dx \ . \tag{19}$$

Nach partieller Integration erhält man eine Lösung des Integrals in Form von Exponential-Integral-Funktionen $E_n(x)$, die in Ref. 37 tabelliert sind. Es ergibt sich für den

energieabhängigen Wirkungsquerschnitt

$$\sigma(v_1) = 2\pi R_K^2 \left[e^{-v^*/v_1} - e^{-2v^*/v_1} + 2E_2\left(\frac{2v^*}{v_1}\right) - E_2\left(\frac{v^*}{v_1}\right)\right]. \quad (20)$$

Auch dieser Umladungsquerschnitt zeigt bei geeigneter Wahl des Parameters $(v^*/v_1)$ ähnlich wie Gleichung (9) ein Maximum im Bereich niedriger Stoßenergien (vergleiche Fig. 46).

## 2.4. Information über Stoßprozesse aus dem Energie- und Impulssatz - Newtondiagramme

Wesentliche Informationen über die Dynamik von Stoßprozessen lassen sich bereits gewinnen, wenn die Erhaltungssätze für Energie und Impuls der Betrachtung zugrunde gelegt werden. Man erhält hieraus Informationen über die möglichen Streuwinkel sowie über die kinetische Energie der Teilchen nach dem Stoß. Wir wollen von der speziellen Wechselwirkung beim Stoß absehen und nur das Verhalten der Teilchen weit vor und weit nach dem Stoß betrachten. Zur Vereinfachung soll weiter angenommen werden, daß das Targetatom im Laborsystem ruht. Dann ist für große Abstände die Relativgeschwindigkeit vor dem Stoß durch die Geschwindigkeit des Projektils zu ersetzen (der Stoßparameter $\rho$ spielt dabei keine Rolle). Der inelastische Stoß erfolge bei solchen Geschwindigkeiten, daß relativistische Effekte nicht berücksichtigt werden müssen.
Seien $\bar{r}_i$ und $\bar{v}_i$ die Orts- und Geschwindigkeitsvektoren der stoßenden Teilchen im Laborsystem, $m_i$ ihre Masse $(i = 1 - 4)$. Im Schwerpunktsystem werden die Vektoren durch den zusätzlichen Index o gekennzeichnet. Die betrachtete Reaktion soll folgendermaßen ablaufen:

$$m_1 + m_2 \rightarrow m_3 + m_4 \quad . \quad (21)$$

Für den Orts- und Geschwindigkeitsvektor des Schwerpunktes gelten folgende Beziehungen:

$$\bar{S} = \frac{m_1\bar{r}_1 + m_2\bar{r}_2}{m_1 + m_2} = \frac{m_3\bar{r}_3 + m_4\bar{r}_4}{m_3 + m_4} , \qquad (22)$$

$$\bar{V} = \frac{m_1}{m_1 + m_2}\,\bar{v}_1 = \frac{m_3\bar{v}_3 + m_4\bar{v}_4}{m_3 + m_4} = \frac{\mu_{12}}{m_2}\,\bar{v}_1 , \qquad (23)$$

wobei mit $\mu_{12} = m_1m_2/(m_1 + m_2)$ die reduzierte Masse der beiden Teilchen vor dem Stoß bezeichnet wird. In. Fig. 5 ist der Stoßprozeß im Labor- und Schwerpunktsystem dargestellt. Die Vektoren in beiden Systemen sind durch folgende Beziehungen verknüpft:

$$\bar{r}_i = \bar{S} + \bar{r}_{io} ,$$
$$\bar{v}_i = \bar{V} + \bar{v}_{io} . \qquad (24)$$

Daraus resultiert:

$$\bar{v}_{1o} = \frac{m_2}{m_1 + m_2}\,\bar{v}_1 ,$$
$$\bar{v}_{2o} = -\frac{m_1}{m_1 + m_2}\,\bar{v}_1 = -\bar{V} . \qquad (25)$$

Beschreiben wir den Stoß im Schwerpunktsystem, so gelten die Erhaltungssätze in folgender Form:

$$m_1\bar{v}_{1o} + m_2\bar{v}_{2o} = m_3\bar{v}_{3o} + m_4\bar{v}_{4o} = 0 \qquad (26)$$

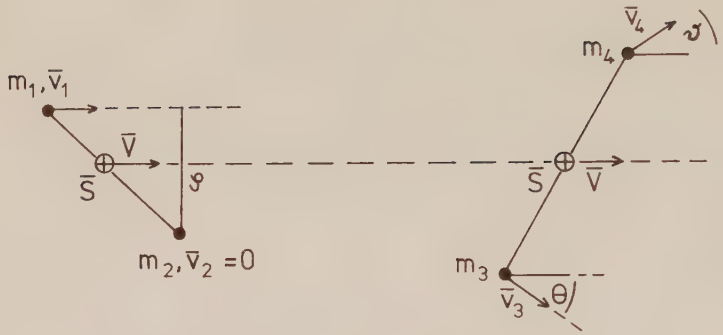
$$\frac{m_1}{2}\,v_{1o}^2 + \frac{m_2}{2}\,v_{2o}^2 + Q = \frac{m_3}{2}\,v_{3o}^2 + \frac{m_4}{2}\,v_{4o}^2 . \qquad (27)$$

Aus diesen Beziehungen folgt für die Impulse der Produktteilchen im Schwerpunktsystem:

$$\bar{p}_{4o} = \{\mu_{12}\mu_{34}v_1^2 + 2\mu_{34}Q\}^{1/2}\cdot\bar{n} = p_{4o}\cdot\bar{n} = -\bar{p}_{3o} . \qquad (28)$$

a) Laborsystem

vor dem Stoß nach dem Stoß




b) Schwerpunktsystem

vor dem Stoß nach dem Stoß

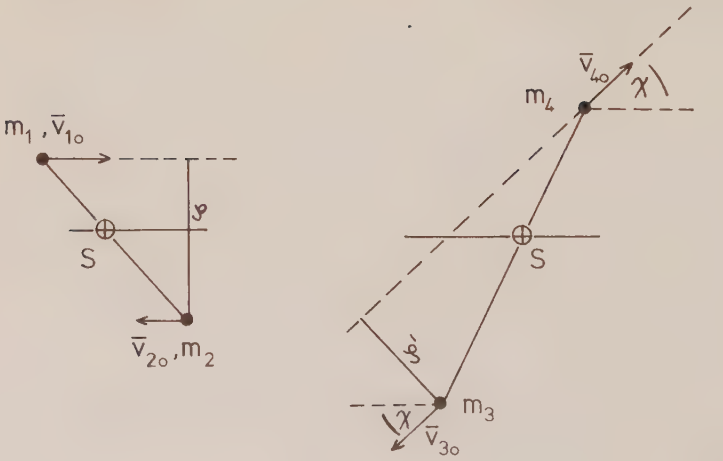



Fig. 5: *Asymptotische Beschreibung von Stoßprozessen im Labor- und Schwerpunktsystem.*

Hierbei bedeuten: $\mu_{34} = m_3 m_4/(m_3 + m_4)$, $\bar{u}$ = Einheitsvektor des Impulses $\bar{p}_{4o}$. Beide Produktteilchen werden unter einem Winkel $\chi$ gestreut, der durch den Vektor $\bar{u}$ festgelegt wird; es gilt $0 \leq \chi \leq \pi$.
Beim Übergang zum Laborsystem erhalten wir für die Impulse:

$$\bar{p}_i = \bar{p}_{io} + m_i \bar{V}$$

$$\bar{p}_3 = - p_{3o} \bar{u} + m_3 \bar{V}, \; \bar{p}_4 = p_{4o} \bar{u} + m_4 \bar{V} \; . \qquad (29)$$

Diese Gleichungen lassen sich formal in einem Newtondiagramm darstellen.

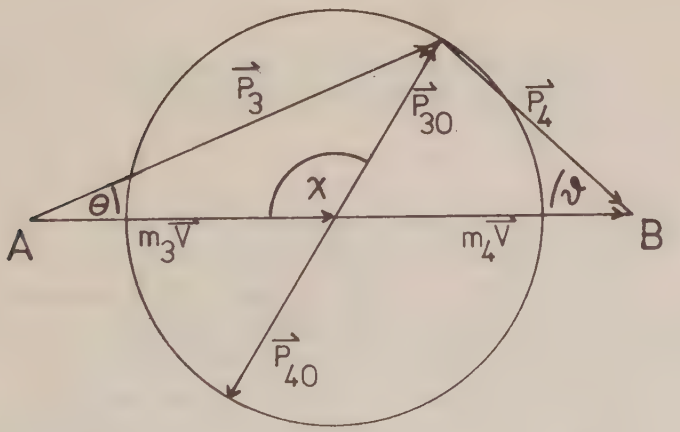



Fig. 6: *Beziehung zwischen den Impulsen der Produktteilchen im Schwerpunkt- und Laborsystem (Newtondiagramm).*

Im Laborsystem werden die Teilchen $m_3$ und $m_4$ unter den Winkeln $\theta$ bzw. $\vartheta$ den Stoßbereich verlassen.

Ob die Punkte A und B innerhalb oder außerhalb des Kreises mit dem Radius $p_{4o}$ liegen, hängt im wesentlichen von der Größe Q ab. Definieren wir

$$\gamma_i = \frac{m_i V}{p_{4o}} \text{ mit } i = 3, 4 \quad , \tag{30}$$

so erhalten wir unter Berücksichtigung der Massenkonstanz ($m_1 + m_2 = m_3 + m_4$) folgende Beziehungen:

$$\gamma_3^2 = \frac{m_1 m_3}{m_2 m_4} \frac{E_o}{E_o + Q} \; ; \quad \gamma_4^2 = \frac{m_1 m_4}{m_2 m_3} \frac{E_o}{E_o + Q} \; . \tag{31}$$

$E_o$ kennzeichnet die Stoßenergie im Schwerpunktsystem, sie entspricht der Differenz von Primärenergie $E_{kl}$ und der Schwerpunktsenergie $(m_1 + m_2)V^2/2$.

Betrachten wir im folgenden reine Umladungsprozesse der Form $X^+ + Y \rightarrow Y^+ + X$, so gilt für die Massen $m_i$: $m_1 = m_4$, $m_2 = m_3$, und damit für $\gamma_3$ und $\gamma_4$:

$$\gamma_3 = \left\{\frac{E_o}{E_o + Q}\right\}^{1/2} \; ; \quad \gamma_4 = \frac{m_1}{m_2} \left\{\frac{E_o}{E_o + Q}\right\}^{1/2} = \frac{m_1}{m_2} \gamma_3 \; . \tag{32}$$

Wir können jetzt die verschiedenen Ladungsaustauschsreaktionen genauer behandeln. Im Falle einer Resonanzumladung ist $Q = 0$ und somit $\gamma_3 = 1$, $\gamma_4 = m_1/m_2$. Der Punkt A liegt auf dem Kreis, so daß für die Produkt-Ionen ein Winkelbereich zwischen 0 und $90^o$ im Laborsystem möglich ist. Der erlaubte Winkelbereich für das neutralisierte Projektil ist abhängig von dem Massenverhältnis $m_1/m_2$. Für leichte Targetatome ($\gamma_4 > 1$) existiert ein maximaler Streuwinkel, der gegeben ist durch

$$\vartheta_{max} = \arcsin \left(\frac{m_2}{m_1}\right) \; . \tag{33}$$

Dieses Ergebnis ist identisch mit dem für den Fall der reinen elastischen Streuung.

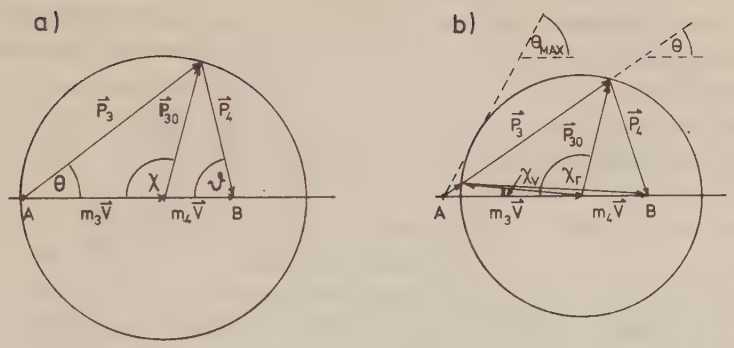



Fig. 7: *Newtondiagramme für das System $Ar^+ + Kr$.*
*a) exothermer Prozess Q = 1,76 eV;*
*b) endothermer Prozess Q = - 11,75 eV.*
*$E_{kl}$ = 60 eV.*

In Fig. 7 sind die Newtondiagramme für den exothermen ($Q > 0$) sowie den endothermen ($Q < 0$) Ladungsaustauschprozeß dargestellt. Es gilt:

| | | | |
|---|---|---|---|
| exotherm | $Q > 0 \rightarrow \gamma_3 < 1$ | → | Der Punkt A liegt innerhalb des Kreises. |
| endotherm | $Q < 0 \rightarrow \gamma_3 > 1$ | → | A liegt außerhalb des Kreises. |

Im exothermen Fall sind für die Produkt-Ionen sämtliche Winkel im Laborsystem zwischen 0 und $\pi$ möglich, außerdem ist die Beziehung zwischen $\theta$ und $\chi$ eindeutig. Bei endothermer Umladung (Fig. 7 b) existiert ein Grenzwinkel

$$\theta_{max} = \arcsin\left[\left(\frac{E_o + Q}{E_o}\right)^{1/2}\right] , \qquad (34)$$

außerdem ist die Beziehung zwischen $\theta$ und $\chi$ nicht mehr eindeutig. Mit Ausnahme von $\theta_{max}$ entsprechen jedem Laborwinkel zwei verschiedene Schwerpunktswinkel $\chi_v$ und $\chi_r$, welche zu unterschiedlichen kinetischen Energien der Produkt-Ionen bei einem Laborwinkel führen. Die Streuung, welche über den größeren Schwerpunktswinkel $\chi_r$ abläuft, bezeichnet man als "Rückwärtsstreuung", die Produkt-Ionen, die unter $\chi_v$ gebildet werden, nennt man "vorwärtsgestreute" Ionen.

In den später untersuchten Systemen ist $\gamma_4$ stets < 1, da $m_1 < m_2$ und $\gamma_3 \approx 1$. Das bedeutet für das neutralisierte Projektil einen möglichen Laborwinkelbereich von $0^o$ bis $180^o$. Den unter $\theta = 0^o$ und $\chi = 180^o$ gebildeten Produkt-Ionen entsprechen jene neutralisierten Primärionen, die unter $\Theta = \pi$ im Laborsystem rückwärtsgestreut werden. Diese Stöße müssen folglich bei einem sehr kleinen Stoßparameter erfolgen, da eine sehr starke Wechselwirkung hierfür Voraussetzung ist. Im folgenden wollen wir die Energie der Produkt-Ionen im Laborsystem bestimmen. Unter Verwendung der Gleichungen (24), (28) und (30) ergibt sich für die kinetische Energie:

$$E_{k3} = \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{k1} \left(1 + \frac{1}{\gamma_3^2} - \frac{2\cos\chi}{\gamma_3}\right) . \qquad (35)$$

Zur Auswertung experimenteller Daten muß der Schwerpunktswinkel $\chi$ ersetzt werden durch den meßbaren Laborwinkel $\theta$. Aus den Newtondiagrammen erhalten wir folgende Beziehung:

$$\tan\theta = \frac{\sin\chi}{\gamma_3 - \cos\chi} . \qquad (36)$$

Daraus folgt:

$$\cos\chi = \gamma_3 \left(\sin^2\theta \mp \cos\theta \left\{\frac{1}{\gamma_3^2} - \sin^2\theta\right\}^{1/2}\right) . \qquad (37)$$

Für den exothermen und resonanten Umladungsprozeß ist das negative Vorzeichen gültig, im endothermen Fall entspricht dieses dem Winkel $\chi_r$, das positive Vorzeichen dagegen $\chi_v$. Setzen wir Gleichung (37) in (35) ein, so erhalten wir die gesuchte Beziehung

$$E_{k3} = \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{k1}\{1 + \frac{1}{\gamma_3^2} - 2\sin^2\theta \pm 2\cos\theta[\frac{1}{\gamma_3^2} - \sin^2\theta]^{1/2}\}$$

$$E_{k3} = \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{k1}\{\cos\theta \pm [\frac{1}{\gamma_3^2} - \sin^2\theta]^{1/2}\}^2. \qquad (38)$$

Wir sehen, daß in endothermen Reaktionen bei festem Laborwinkel zwei Ionengruppen unterschiedlicher Energie auftreten können. Vergrößert man den Laborwinkel, so nimmt der Wert der Quadratwurzel in (38) ab, die kinetischen Energien beider Ionengruppen nähern sich einander, bis beim Erreichen des Grenzwinkels der Wurzelausdruck verschwindet. Für diesen Grenzwinkel gilt:

$$E_{k3}\ (\theta_{max}) = -\frac{m_1}{m_1 + m_2} Q \ . \qquad (39)$$

Die kinetische Energie der Produkt-Ionen, welche unter dem Grenzwinkel gebildet werden, ist unabhängig von der Stoßenergie, sie wird allein durch die Massen der Teilchen sowie den Energiedefekt Q festgelegt. Nehmen wir für Q einen realistischen Wert von - 1OeV an und sei $m_2 > m_1$, so sehen wir, daß die "vorwärtsgestreuten" Ionen eine maximale Energie von nur einigen eV aufweisen können.

Gleichung (38) gibt uns die Möglichkeit, bei festem Nachweiswinkel $\theta$ und vorgegebener Primärenergie $E_{k1}$ durch Bestimmung von $E_{k3}$ Aussagen über $\gamma_3$ und damit über den Energiedefekt Q zu gewinnen. Notwendig hierfür ist eine Massen-, Energie- und Winkelanalyse der beim Ladungsaustausch gebil-

deten Produkt-Ionen. Eine Auflösung von Gleichung (38) nach Q ergibt für reine Umladungsprozesse ($m_1 = m_4$, $m_2 = m_3$):

$$Q = (1+\frac{m_2}{m_1})\ E_{k3} - 2\cos\theta\ \{\frac{m_2}{m_1}\ E_{k1}\ E_{k3}\}^{1/2} \quad . \qquad (40)$$

Wird die Verteilung der kinetischen Energien der Produkt-Ionen bei festem $\theta$ gemessen, so ergibt sich hieraus eine Aussage über die Bedeutung der verschiedenen Reaktionskanäle, die durch Q definiert werden.

Wie gut verschiedene Reaktionskanäle im Experiment getrennt werden können, hängt vom untersuchten System ab. Es soll deshalb zum Abschluß dieses Abschnittes eine Abschätzung vorgenommen werden über die kinetische Energie der Produkt-Ionen sowie über die Energieänderung mit Q in den später besprochenen Systemen.

Wird Gleichung (38) nach der Größe Q differenziert, so erhält man folgende Beziehung:

$$\frac{\partial E_{k3}}{\partial Q} = \frac{m_1}{m_1 + m_2}\ \{\frac{\gamma_3\cos\theta \pm (1 - \gamma_3^2\sin^2\theta)^{1/2}}{(1 - \gamma_3^2\sin^2\theta)^{1/2}}\} \quad . \qquad (41)$$

Setzen wir $\gamma_3 \approx 1$, was für höhere Stoßenergien sicher erfüllt ist, so vereinfacht sich (41) zu

$$\frac{\partial E_{k3}}{\partial Q}\Big|_{\gamma_3 \approx 1} = \frac{2m_1}{m_1 + m_2} \quad \text{bzw.} = 0 \quad . \qquad (42)$$

Im Falle der endothermen Prozesse ist nach Gl. (42) keine Auflösung bezüglich der Größe Q für "vorwärtsgestreute" Ionen möglich; die Auflösung der "rückwärtsgestreuten" Ionen wird durch den Faktor $m_1/(m_1 + m_2)$ bestimmt.

Die auf das Target übertragene Energie beträgt nach Gl. (38) für $\theta = 0$ und $\gamma_3 \approx 1$:

$$E_{k3}(\theta = 0) \Big|_{\gamma_3 \approx 1} = \frac{4m_1m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{k1} \quad \text{bzw.} = 0 \,. \qquad (43)$$

In Tab. 1 sind die kinetischen Energien der Produkt-Ionen sowie deren Änderung mit Q für die verschiedenen Systeme zusammengestellt.

| System | $m_1/(m_1+m_2)$ | $\partial E_{k3}/\partial Q$ | $m_1m_2/(m_1+m_2)^2$ | $E_{k3}(0^o)/E_{k1}$ |
|---|---|---|---|---|
| $He^+$+Kr | 0,045 | 0,09 | 0,043 | 0,172 |
| $Ne^+$+Kr | 0,192 | 0,384 | 0,155 | 0,62 |
| $Ar^+$+Kr | 0,323 | 0,646 | 0,218 | 0,874 |

Tabelle 1: *Zusammenstellung der beim Stoß übertragenen kinetischen Energien sowie deren Änderung mit Q ($\theta = 0^o$, $\gamma_3 \approx 1$).*

Tabelle 1 zeigt, daß im Falle eines leichten Projektils und eines schweren Targets ($He^+$+Kr) nur wenig Energie auf das Targetatom übertragen wird; diese Energie ändert sich nur wenig bei Variation von Q. Wird die Masse des Projektils erhöht, so wird sowohl die übertragene kinetische Energie als auch ihre Änderung mit Q größer.
Da sämtliche Sekundärionen bei ungefähr gleicher Energie nachgewiesen werden, müssen die langsameren Ionen nachbeschleunigt werden. Entscheidend für die Auflösung der verschiedenen Reaktionskanäle ist deshalb nicht die relative Größe $(\partial E_{k3}/\partial Q)/E_{k3}$, sondern der absolute Wert von $\partial E_{k3}/\partial Q$.

Es ist nach diesen Überlegungen zu erwarten, daß im System $Ar^+$+Kr leichter Aussagen über verschiedene Reaktionskanäle zu erhalten sind als in den beiden anderen Systemen.

## 3. Beschreibung der Meßapparatur

Die Apparatur zur Messung der relativen differentiellen Wirkungsquerschnitte von Umladungsreaktionen besteht im wesentlichen aus drei verschiedenen Komponenten, die in einem Vakuumbehälter (Durchmesser ≈ 1 m) untergebracht sind. Dies sind eine Einheit zur Primärstrahlerzeugung, eine Stoßzelle sowie ein Nachweissystem für die im Stoßbereich gebildeten Ionen. Die Anordnung ist schematisch in Fig. 8 dargestellt.

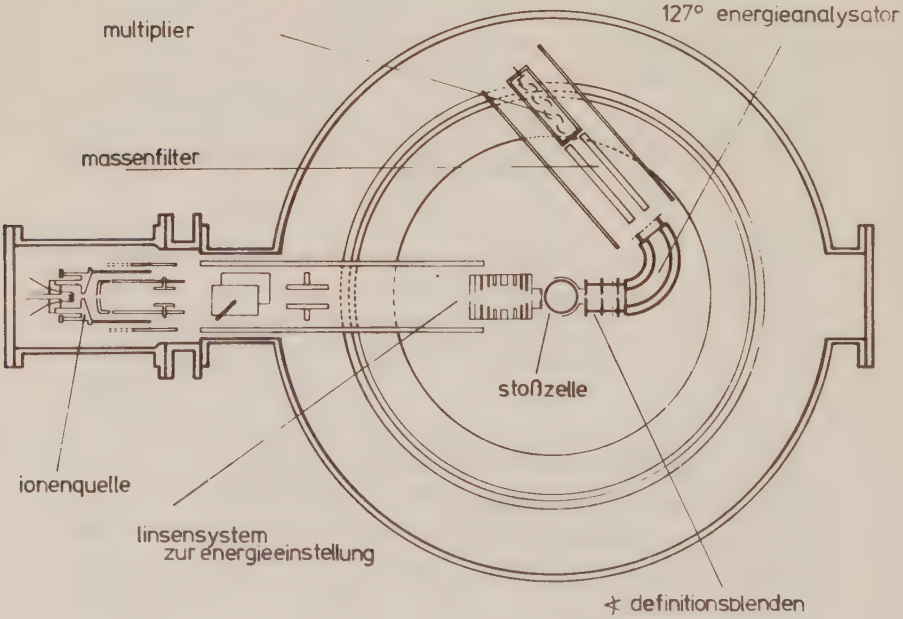



Fig. 8: *Schematische Darstellung der Apparatur zur Messung differentieller Wirkungsquerschnitte.*

Positive Ionen werden aus der Ionenquelle extrahiert und in einem elektrostatischen Linsensystem geführt und fokussiert. Unmittelbar vor der Stoßzelle wird der Ionenstrahl - je nach gewünschter Energie - verzögert oder beschleunigt und in die Öffnungsblende der Stoßzelle geschossen, wo sich das Targetgas befindet. In der Nachweiseinheit, die um die Stoßzelle gedreht werden kann, werden die Ionen bezüglich des Winkels, der kinetischen Energie und der Masse analysiert sowie mit einem Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) nachgewiesen. Im folgenden sollen die einzelnen Teile genauer beschrieben werden.

## 3.1. Erzeugung des Primärstrahls

### 3.1.1. Ionenquelle

Als Ionenquelle dient eine Niedervoltbogenentladung, aus deren Anode die positiven Edelgasionen durch das Saugpotential der nachfolgenden Linse extrahiert werden. Auf eine detaillierte Beschreibung dieser Ionenquelle wird hier verzichtet, da in Ref. 17, 38 eine ausführliche Darstellung gegeben sowie ein Test der Quelle vorgenommen wurde. Wie in Fig. 9 zu sehen ist, wurde die Anode sowie die Extraktionslinse als Pierce-Linsenanordnung ausgebildet, um durch eine geeignete Form des Beschleunigungspotentials eine günstige Strahlformung zu erreichen (Ref. 39). Dabei wird eine Strahlaufweitung durch Raumladung auf der Beschleunigungsstrecke vermieden. Mit der folgenden Einzellinse wird der Strahl auf die Eingangsblende des Linsensystems vor der Stoßzelle fokussiert. Durch zwei zusätzliche Ablenkplattenpaare kann die Strahlrichtung fein nachgeregelt werden.

Wie bereits in Ref. 17 ausgeführt, beträgt die Lebensdauer des Heizfadens in der Ionenquelle zwischen 50 und 100 h.

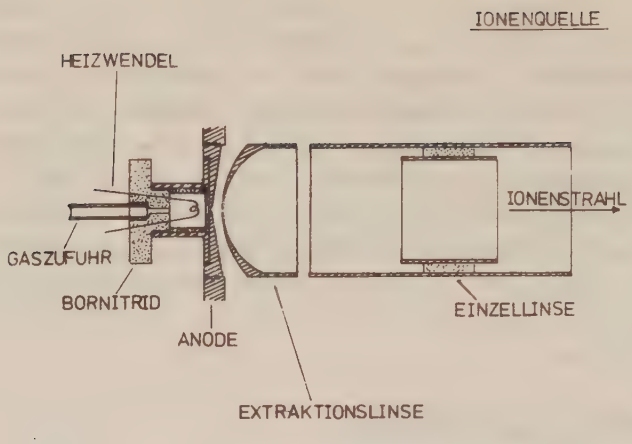



Fig. 9: *Ionenquelle mit anschließendem Extraktionssystem*

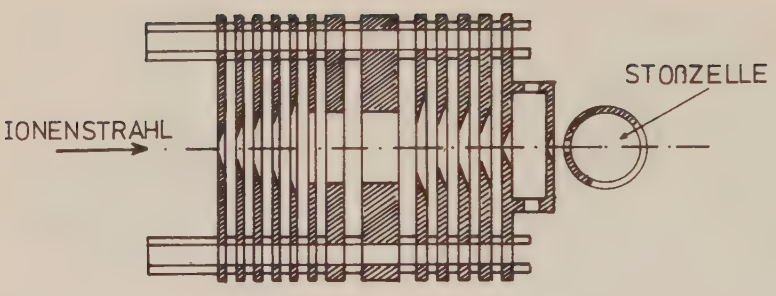
Um ein Auswechseln des Heizfadens zu ermöglichen ohne Belüftung des Hauptrezipienten sowie um ein besseres Vakuum in dem Hauptrezipienten zu erzielen, wurde die gesamte Ionenquelleneinheit in einem Zusatzrezipienten aufgebaut, der differentiell gepumpt wurde und durch ein Torventil von der Hauptkammer abtrennbar war. Dabei mußte allerdings ein relativ großer Laufweg der Ionen zwischen Quelle und Stoßzelle (≈ 70 cm) in Kauf genommen werden. Eine Abschätzung der Strahlaufweitung durch Raumladungsfelder nach Ref. 40 ergab einen Minimalwert für die kinetische Energie der $Ar^+$-Ionen von ≈ 300 eV. In diesem Fall betrug die Aufweitung am Ort der Stoßzelle ≈ 0,5 mm, was vom Experiment her zulässig war. Da jedoch die Ionen-Atom-Stöße in einem Bereich der kinetischen Energien von ≈ 10 eV bis 500 eV untersucht werden sollten, war eine endgültige Energieeinstellung - besonders bei starker Verzögerung der Ionen - unmittelbar vor der Stoßzelle in einem separaten Linsensystem notwendig.

### 3.1.2. Energieeinstellung des Primärstrahls

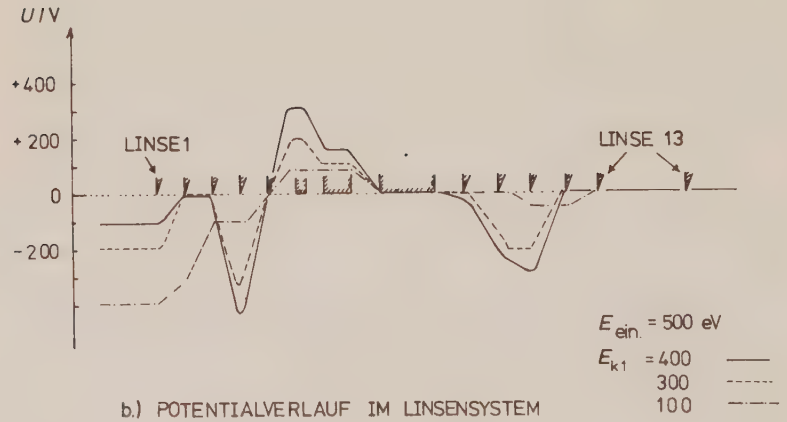
Das Linsensystem zur Verzögerung oder Beschleunigung der Primärionen besteht aus 13 Lochblenden mit unterschiedlichen Lochkreisdurchmessern (vgl. Fig. 10 a). Die geometrische Anordnung der einzelnen Linsen ist dem Lindholm'schen Aufbau nachempfunden, wie er in Ref. 41 angegeben wird. Vor dem Einbau dieses Systems waren bereits mehrere andere Anordnungen getestet worden, unter anderem eine Folge äquidistanter Blenden mit gleichen Blendendurchmessern, mit deren Hilfe ein exponentielles Abbremsfeld der Form $U(x) = a \cdot \exp(-bx)$ erzeugt wurde. Hierbei bedeuten a und b Konstanten, x die Ortskoordinate in Strahlrichtung sowie U(x) das Potential entlang der Achse. Die Wahl dieses Potentials hat den Vorteil, daß die Fokussierungseigenschaften der ersten und der letzten Blende sich kompensieren, d. h. daß die Brennweiten beider Linsen dem Betrage nach gleich groß sind. Wie eine theoretische Berechnung von Willmore (Ref. 42) zeigt, sollte bei einem solchen System eine Verzögerung der Primärionen besser möglich sein als bei anderen Anordnungen.

Ein experimenteller Vergleich der verschiedenen Systeme ergab jedoch bei dem verwendeten System eine bessere Qualität des abgebremsten Ionenstrahls. Als Kriterien hierfür wurden der Primärionenstrom sowie die Strahldivergenz hinter der Stoßzelle in Abhängigkeit von der Größe des Verzögerungsfeldes angesehen.

Im Experiment wurde der in Fig. 10 b dargestellte Potentialverlauf verwendet. Der Strahl läuft mit einer Energie von 500 eV in das System ein, wird bereits in der Mitte des Systems unter die gewünschte Endenergie abgebremst und anschließend erneut beschleunigt. Eine Nachfokussierung wird durch die als Einzellinsensystem wirkenden Linsen 9 - 12




a.) LINSENSYSTEM




b.) POTENTIALVERLAUF IM LINSENSYSTEM

Fig. 10: a) Aufbau des Linsensystems zur Einstellung der Strahlenergie
b) axialer Potentialverlauf im Linsensystem bei der Verzögerung eines 500 eV-Strahles auf eine Stoßenergie von 100, 300 und 400 eV.

vorgenommen. Es zeigte sich, daß beim Verändern der Strahlenergie ungefähr die Hälfte der Blendenpotentiale nachgeregelt werden mußte, sollte der Strahl optimal fokussiert bleiben. Bei dieser Handhabung führte eine Verzögerung der Ionen von 500 eV auf 20 eV zu einer Abnahme des Ionenstroms in der Stoßzelle von $10^{-8}$ A auf $3 - 5 \cdot 10^{-10}$ A. Die Strahldivergenz wird dabei durch zwei Lochblenden (Ø = 1,0 mm) auf $2{,}8^{\circ}$ begrenzt, deren Potential mit dem Stoßzellenpotential zusammenfällt, so daß der Bereich zwischen den Lochblenden und der Stoßzelle feldfrei gehalten wird. Dies führt zu einer homogenen Strahlenergie.

### 3.1.3. Untersuchung der Primärstrahleigenschaften

Mit der im nächsten Abschnitt beschriebenen Nachweiseinheit für die Sekundärionen konnte auch die Strahlform, die Energiebreite sowie die Ionenzusammensetzung des Primärstrahls experimentell untersucht werden.

Aus dem Ionenstrom, der hinter den winkelauflösenden Blenden des drehbaren Nachweissystems gemessen wurde, konnte das Strahlprofil erhalten werden, welches in Fig. 11 für $Ar^+$-

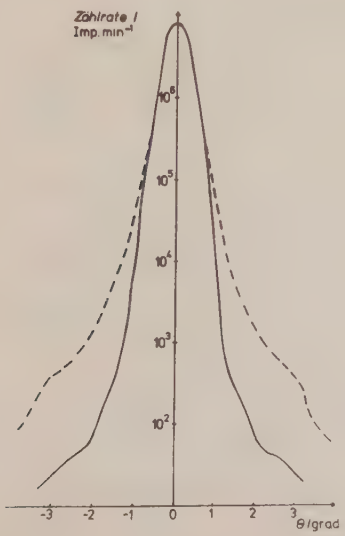



Fig. 11:
*Profil eines $Ar^+$-Ionenstrahls bei Stoßenergien von 100 eV (---) und 400 eV (——).*

Ionen dargestellt ist. Wie zu erwarten, ist die Strahldivergenz größer bei kleineren Ionenenergien infolge der stärkeren Verzögerung, jedoch in beiden Fällen sind die Halbwertsbreiten $\leq 1^{o}$ und somit ausreichend für die durchzuführenden Experimente. Es zeigte sich, daß die Halbwertsbreite des Strahls unabhängig war von dem im Experiment eingestellten Targetgasdruck. Solche Profile werden jedoch nur erhalten nach mehrmaliger genauer Justierung sämtlicher Linsen, wodurch Einflüsse von Reflexion bzw. Streuung an den einzelnen Lochblenden beseitigt wurden. Der Hauptanteil in den Schultern im Strahlprofil wird von der elastischen Streuung am Restgas in der Stoßzelle geliefert, speziell vom Quellengas, das zur Stoßzelle diffundiert. Eine schwache Andeutung der Interferenzstrukturen beim Stoß von $Ar^{+}$ mit Ar kann in den Flügeln des Profils beobachtet werden.

Die Energie-Verteilungsfunktion der primären Ionen hat eine Halbwertsbreite $\Delta E$ von weniger als 1 eV, sie ist allerdings abhängig von der verwendeten Gasart in der Ionenquelle sowie von den eingestellten Quellenparametern. Für $Ar^{+}$-Ionen erhält man einen sehr günstigen Wert $\Delta E$ von 0,4 - 0,8 eV, bei einem $He^{+}$-Strahl liegen die Werte zwischen 1,0 eV und 1,4 eV. Neben Entladungsspannung und Druck beeinflußt vor allem die Extraktionsspannung das Energieprofil. Wie Fig. 12 zeigt, nimmt die Halbwertsbreite $\Delta E$ nahezu linear mit der Extraktionsspannung infolge des stärker werdenden Durchgriffes zu; im Experiment sollten deshalb möglichst niedrige Saugfelder verwendet werden. Da andererseits - wie in Ref. 17 diskutiert - der extrahierte Ionenstrom mit zunehmender Spannung an der Piercelinse stark anwächst, wurden bei den Messungen Werte zwischen 500 eV und 1000 eV für die Extraktionsspannung eingestellt.

Für die Ionenenergie wurde die Spannungsdifferenz zwischen der Anode, aus der die Ionen extrahiert werden, und der

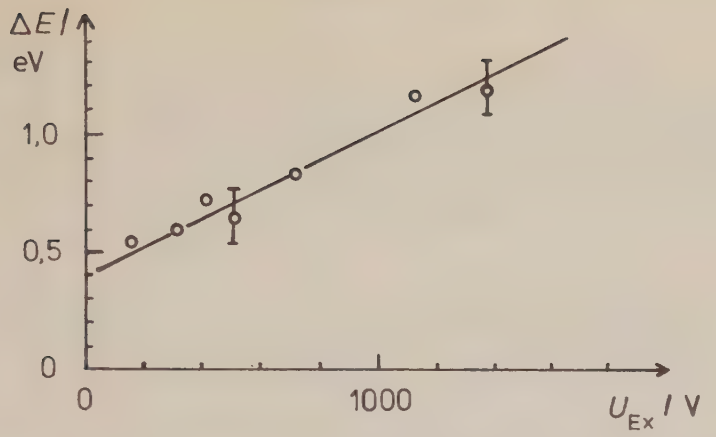



Fig. 12: *Halbwertsbreite ΔE des Primärstrahls ($Ar^+$) in Abhängigkeit von der Extraktionsspannung $U_{Ex}$. Strahlenergie = 50 eV.*

Stoßzelle zugrunde gelegt. Die Messungen ergaben jedoch, daß die wahre Energie um 1 - 2 eV niedriger liegt. Dies ist verständlich, da das Potential der Plasmagrenze nicht notwendigerweise mit dem Anodenpotential übereinstimmt. Zum anderen können auch Kontaktpotentiale die Spannungsmessung verfälschen.

Mit dem im Nachweissystem eingebauten Quadrupolmassenfilter konnte die Ionenzusammensetzung des Primärstrahls gemessen werden. In Tabelle 2 sind für einen $Ar^+$-Ionenstrahl die stärksten Verunreinigungen prozentual angegeben.

| Ionensorte | $N_2^+$ | $N^+$ | $O_2^+$ | $O^+$ | $H_2O^+$ | $OH^+$ | $H_2^+$ | $H^+$ |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| %-Anteil r | 0,5 | 0,2 | <0,2 | <0,1 | 0,3 | <0,2 | 0,2 | 0,3 |

Tabelle 2: *Prozentualer Anteil der verschiedenen Verunreinigungsionen im primären $Ar^+$-Strahl (Die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit der einzelnen Ionen wurde berücksichtigt (s. 6.3)).*

Neben $Ar^+$-Ionen befinden sich vor allem $N_2^+$, $N^+$, $O_2^+$, $O^+$, $H_2O^+$, $OH^+$ sowie $H^+$ und $H_2^+$ im Strahl; diese Zusammensetzung

gilt ebenfalls für andere verwendete Entladungsgase, da die Verunreinigungen im wesentlichen von den Zuleitungen und nicht vom verwendeten Quellengas herrührten. Insgesamt machen die Verunreinigungen jedoch weniger als 1,5 % aus.

Zweifach geladene Primärionen treten in nennenswertem Umfang auf, sobald die Entladungsspannung $U_E$ in der Ionenquelle den energetischen Schwellwert für Zweifachionisation überschreitet. Im Falle des Ar erreichen die $Ar^{++}$-Ionen bei $U_E$ = 150 V einen Anteil von ~ 20 %, unter 50 V ist ihr Anteil nicht meßbar, siehe Fig. 13.

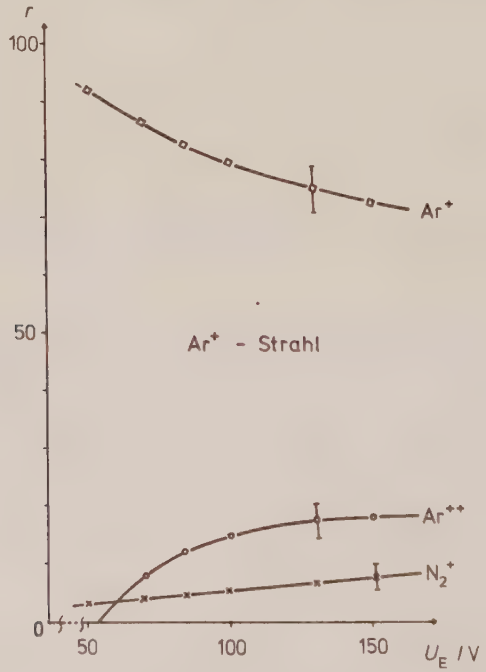



Fig. 13: *Abhängigkeit der Zusammensetzung des Primärstrahls von der Entladungsspannung $U_E$. (r = relativer Ionenanteil in %).*

Bedenkt man, daß Sekundärionen, die aus Reaktionen der Verunreinigungen mit dem Targetgas resultieren, zusätzlich durch

ihre kinetische Energie diskriminiert werden können, so erscheint der Verzicht auf eine primäre Massenselektion bei Experimenten mit einfach geladenen Ionen gerechtfertigt. Hierdurch konnten wesentlich größere Ionenströme (primär $\approx 10^{-8}$ A) erzielt und somit der Nachweis der geringen Sekundärströme erleichtert werden.

Aussagen über den elektronischen Zustand der Primärionen sind nur schwer möglich. Eine Berechnung der Ionenlaufzeit von der Quelle bis zur Stoßzelle liefert Werte von einigen 10 $\mu$sec, so daß neben dem Grundzustand nur metastabile Zustände eine Rolle spielen können. Da im Falle des Ar in der Quelle Entladungsspannungen von < 30 V benutzt wurden, war eine Bevölkerung der höheren metastabilen Niveaus nicht möglich (Ref. 43). Lediglich die metastabilen Ionenzustände $^4D_{7/2}$, $^4F_{9/2}$, $^4F_{7/2}$ und $^2F_{7/2}$ können mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit gebildet werden, allerdings sollte nach Ref. 44 ihr Anteil bezüglich der $^2P$-Produktion < 1 % sein. Ähnlich sind die Verhältnisse bei der Erzeugung eines $Ne^+$-Ionenstrahls, da auch dort die Entladungsspannung niedrig gehalten werden konnte. Um jedoch eine stabile Heliumentladung zu erhalten, waren $U_E$-Werte zwischen 60 und 90 V erforderlich. Der Anteil des metastabilen $He^+(2^2S_{1/2})$-Zustandes wurde abgeschätzt im Vergleich zum Anteil des $He^+(1^2S_{1/2})$-Grundzustandes auf 1 % (Ref. 45).

Der Einfluß der Metastabilen im Primärstrahl sollte demnach gering sein. Ähnlich wie bei den Verunreinigungen kann durch die Energieanalyse der Sekundärionen der Einfluß der elektronisch angeregten Primärteilchen experimentell untersucht werden. In Übereinstimmung mit der obigen Abschätzung ergab sich kein wesentlicher Einfluß von Metastabilen. Dies soll bei der Diskussion der Meßergebnisse näher erläutert werden.

In Tabelle 3 sind die charakteristischen Werte der verwendeten Primärstrahlen zusammengestellt.

| Quellengas | $U_E$/V | $p_{Quelle}$/Torr | ΔE/eV |
|---|---|---|---|
| He | 60 - 90 | 0,1 | 1,1 - 1,4 |
| Ne | 15 - 30 | 0,05 | 0,6 - 1,0 |
| Ar | 10 - 30 | 0,03 | 0,4 - 0,8 |

Tabelle 3: *Charakteristische Daten der verwendeten Primärstrahlen.*

## 3.2. Stoßzellenbereich

Für den Aufbau des Stoßbereiches sind prinzipiell zwei Anordnungen denkbar. Einerseits kann das Target als Gas vorliegen, welches eine relativ gasdichte Stoßzelle gleichmäßig ausfüllt, zum anderen ist ein Atomstrahl möglich, welcher den primären Ionenstrahl in einem offenen evakuierten Bereich durchkreuzt. Im folgenden sollen kurz die Gesichtspunkte genannt werden, die zur Wahl einer Stoßkammer im Experiment führten.

Zur Messung der wahren Energie- und Winkelverteilungen der im Stoßzellenbereich gebildeten Sekundärionen ist es notwendig, einen feldfreien Wechselwirkungsbereich zu schaffen, der nicht von den elektrischen Feldern des Abbrems- und Nachweissystems beeinflußt wird. Dies ist besonders bei der Verwendung einer abgeschlossenen Stoßzelle gewährleistet. Hierbei wird jedoch ein relativ großes Reaktionsvolumen, welches stark abhängt vom Nachweiswinkel, in Kauf genommen im Gegensatz zu gekreuzten Strahlen, wo der Stoßbereich nahezu punktförmig und klar definiert ist.

Eine entscheidende Größe ist die Targetgasdichte. Bei Verwendung eines Atomstrahls können im Reaktionsbereich typischerweise Targetgasdichten in der Größenordnung von $10^{10}$ - $10^{11}$ Teilchen pro $cm^3$ erreicht werden, was etwa einem Druck von

$10^{-7}$ bis $10^{-6}$ Torr entspricht. Stoßzellen gestatten Gasdrucke von $10^{-4}$ bis $10^{-3}$ Torr unter Wahrung der sogenannten "Einzelstoßbedingungen". Der Vergleich zeigt, daß im letzteren Fall wesentlich größere sekundäre Ionenströme zu erwarten sind. Außerdem sind störende Einflüsse von Restgasteilchen vielmals geringer; im Experiment mit gekreuzten Strahlen muß der Atomstrahl gepulst werden, da Restgas- und Targetgasdruck die gleiche Größenordnung erreichen.

Ein Abwägen dieser Vor- und Nachteile führte zur Benutzung einer Stoßzelle, die in Fig. 14 dargestellt ist.

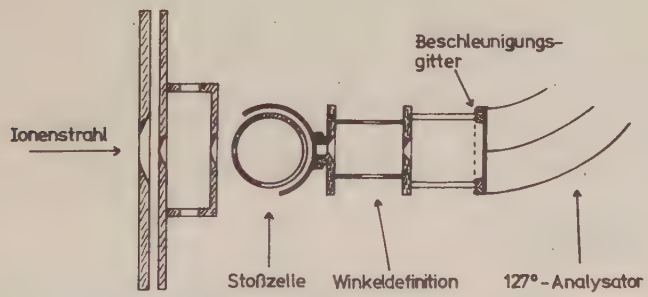



Fig. 14: *Darstellung des Stoßzellenbereiches mit Winkeldefinitionsblenden und anschließendem Beschleunigungsgitter.*

Sie besteht aus einem zylindrischen Rohr mit einem inneren Durchmesser von 1,8 cm, welches eine Eingangsöffnung (Ø = 2 mm) für den Primärstrahl sowie einen Ausgangsschlitz (Breite = 2 mm, Länge = 2,3 cm) zum Nachweis der Sekundärionen besitzt. Die Ausgangsöffnung ist fast vollständig bedeckt von einer Blende, welche am Nachweissystem befestigt ist und damit um die Stoßzelle gedreht werden kann. Dadurch ist die Stoßzelle gut von dem Hauptrezipienten abgetrennt und ermöglicht dennoch Nachweiswinkel zwischen

$\sim -20^{\circ}$ und $\sim +110^{\circ}$ bezüglich der Primärstrahlrichtung. Die letzte Doppelblende des Linsensystems vor der Zelle, die Stoßzelle selber sowie die folgenden Winkeldefinitionsblenden des Nachweissystems sind elektrisch verbunden und erzeugen einen feldfreien Stoßraum. Lediglich beim Nachweis sehr langsamer Ionen mit kinetischen Energien $\sim$ 5 - 10 eV wurden an die Winkeldefinitionsblenden negative Potentiale zur Extraktion der Ionen angelegt.

Das Targetgas wird über ein Reduzierventil der Stoßzelle zugeführt und über eine Ionisationsmanometerröhre, die am oberen Ende der Stoßzelle angebracht ist, gemessen. Hiermit wurde lediglich die Einstellung des Druckwertes vorgenommen, die Druckkonstanz während des Experimentes wurde durch Messung des Druckes außerhalb der Zelle überprüft. Es ist zu berücksichtigen, daß der Druck innerhalb der Stoßzelle $p_{SZ}$ von der Stellung des Nachweissystems abhängt, da der Ausgangsspalt unterschiedlich stark von der nachfolgenden Blende abgedeckt wird. In Fig. 15 ist die

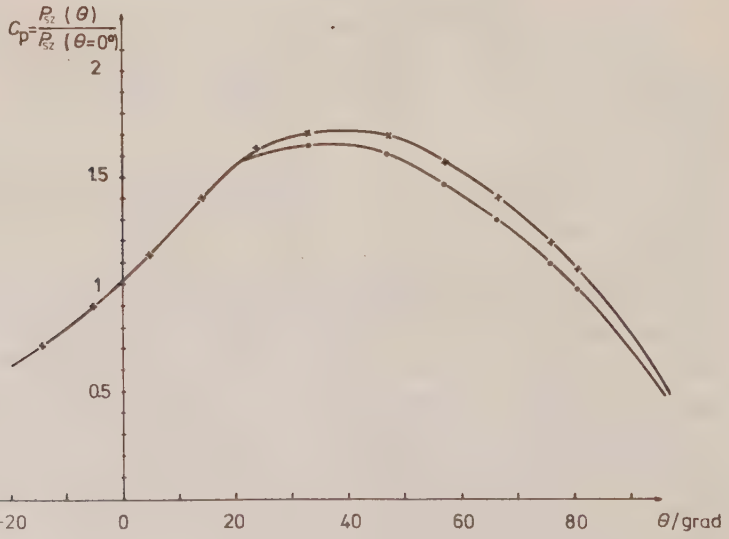



Fig. 15: *Änderung des Stoßzellendruckes mit dem Nachweiswinkel θ. o und x entsprechen Meßwerten bei unterschiedlicher Drehrichtung des Nachweissystems.*

Korrekturgröße $c_p(\theta) = p_{SZ}(\theta)/p_{SZ}(\theta = 0^o)$ in Abhängigkeit von $\theta$ angegeben. Es zeigte sich, daß bei den verwendeten Targetgasdichten der Kurvenverlauf unabhängig von der Größe des Stoßzellendruckes war. Eine geringe Abhängigkeit des Druckes (2 - 5 %) von der Drehrichtung des Nachweissystems konnte zwar experimentell nicht beseitigt jedoch in der Korrektur der Meßwerte berücksichtigt werden. Bei der Bestimmung der differentiellen Wirkungsquerschnitte wurde die in Fig. 15 dargestellte Druckänderung in der Stoßzelle mit $\theta$ berücksichtigt, nachdem bei festen Nachweiswinkeln die Druckabhängigkeit der Zählraten untersucht worden war.

Durch Mehrfachstöße in der Stoßzelle können sowohl die Energiespektren der Ionen sowie ihre Winkelverteilung stark verfälscht werden. Es wurden deshalb so kleine Targetgasdichten eingestellt, daß "Einzelstoßbedingungen" gewährleistet sind. Bei Stoßzellendrucken kleiner $10^{-3}$ Torr ergeben sich mittlere freie Weglängen, die wesentlich größer als der Stoßzellendurchmesser sind, so daß hier keine Einflüsse durch Mehrfachstöße zu erwarten sind.

### 3.3. Nachweissystem für sekundäre Ionen

Aus den Produkt-Ionen, die die Stoßzelle verlassen, wird durch zwei Winkeldefinitionsblenden ein Strahl ausgeblendet und anschließend - falls nötig - in einem Gittersystem beschleunigt. Die Analyse der kinetischen Energie wird in einem $127^o$ elektrostatischen Sektorfeld vorgenommen, eine Separation nach dem Verhältnis von Ladung zu Atommasse erfolgt anschließend in einem elektrostatischen Quadrupolmassenfilter. Danach werden die transmittierten Ionen auf eine Energie von 2000 bis 3000 eV beschleunigt und mit einem Teilchenmultiplier nachgewiesen.

3.3.1. Winkelanalyse

Die Winkeldefinitionseinheit besteht aus zwei Lochblenden, deren Abstand 2 cm beträgt und deren Öffnungen über einen Durchmesser von 0,5 mm verfügen (s. Fig. 14). Dadurch wird ein Öffnungswinkel für die Nachweiseinheit von $\pm$ 1,5° definiert. Beide Blenden sind elektrisch verbunden, sie können - falls nötig - im Potential gegenüber der Stoßzelle verschoben werden.

Wie bereits oben erwähnt, hängt bei einer Stoßzellenanordnung das effektive Reaktionsvolumen vom Nachweiswinkel $\theta$ ab. Das Reaktionsvolumen ist der Bereich, in welchem ein Teilchen am Target unter einem Winkel $\theta \pm \Delta\theta$, $\phi \pm \Delta\phi$ in den Öffnungswinkel des Nachweissystems gestreut wird. Für eine Berechnung dieses Volumens ist streng genommen die Blendengeometrie allein nicht ausreichend. Vielmehr müssen Größen bekannt sein wie die dreidimensionale Stromdichteverteilung des Primärionenstrahls sowie die Nachweiswahrscheinlichkeit als Funktion von $\delta\theta$ und $\delta\phi$, wobei $0 \leq \delta\theta \leq \Delta\theta$ und $0 \leq \delta\phi \leq \Delta\phi$ gilt. Nimmt man an, daß sämtliche Ionen, welche die Winkeldefinitionsblenden durchlaufen, auch in den Energie- und Massenanalysator gelangen und anschließend nachgewiesen werden, so kann man aus der vorgegebenen Geometrie die Änderung des Reaktionsvolumens mit $\theta$ abschätzen. Es wird davon ausgegangen, daß das Reaktionsvolumen proportional ist zur Überkreuzungsfläche von primärem Ionenstrahl mit dem Öffnungswinkel der Nachweisanordnung (s. Fig. 16). Die Änderung des Reaktionsvolumens RV mit dem Winkel $\theta$ ist in Fig. 16 dargestellt. Das Reaktionsvolumen ist am größten in Vorwärtsrichtung, es nimmt zu großen Winkeln $\theta$ hin ab und erreicht bei $\theta = 90°$ ein Minimum. Die gemessenen Zählraten der Sekundärionen wurden mit dieser Kurve korrigiert.

Zwischen den Blenden zur Winkelfestlegung und dem nachfolgenden Energieanalysator ist ein Gitter angebracht, um eine nachträgliche Beschleunigung der Ionen vorzunehmen. Infolge

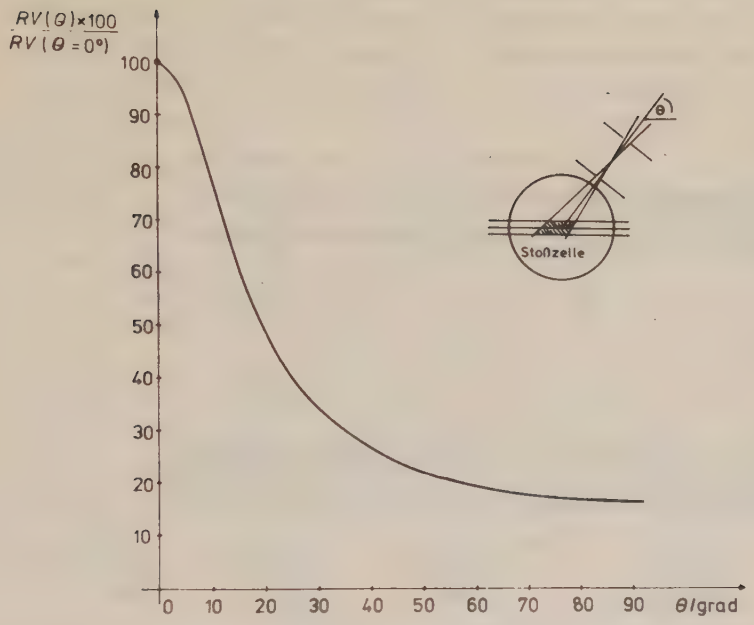


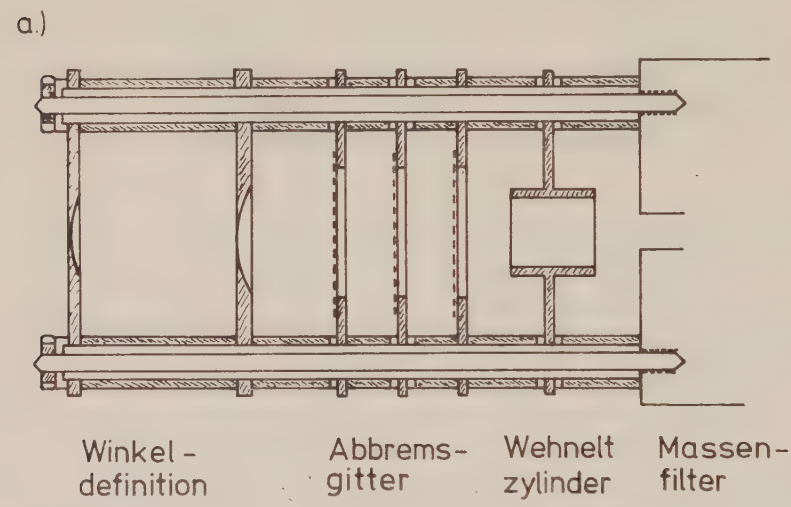

Fig. 16: *Abnahme des Reaktionsvolumens RV mit wachsendem Laborwinkel θ. Das Reaktionsvolumen (schraffierte Fläche) wurde graphisch ermittelt.*

des großen Abstandes zwischen Gitter und zweiter Blende der Winkelauflösung sowie deren kleiner Blendenöffnung ist ein Einfluß des Beschleunigungsfeldes auf die Zählrate bei den verwendeten Potentialen nicht nennenswert. Eine eingehendere Diskussion hierüber wird in Kap. 4 durchgeführt.

### 3.3.2. Energieanalyse

Für die Analyse der kinetischen Energie der Produkt-Ionen bieten sich zwei Anordnungen an. Einerseits können die Ionen in einem Gittersystem auf 0 eV abgebremst und anschließend wieder beschleunigt werden, zum anderen ist die Energiebestimmung in einem Zylinderkondensator ohne Änderung der Energie möglich.

Da im ersten Fall bei nur geringer oder ohne Abbremsung sämtliche Ionen das Energiefilter passieren können, sind hiermit integrale Messungen möglich, die zu beträchtlich größeren nutzbaren Signalen führen als die zweite Anordnung.



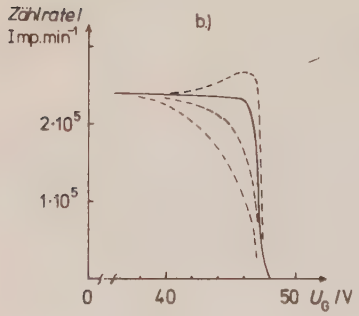




Fig. 17: a) mechanischer Aufbau des Gegenfeldanalysators.
b) Abbremskurven eines $Ar^+$-Strahls ($E_{kl}$ = 48,5 eV) bei unterschiedlicher Fokussierung mit dem Wehneltzylinder (die durchgezogene Kurve liefert die wahre Energieverteilung).

In Fig. 17 a ist der Aufbau des zunächst verwendeten Systems wiedergegeben. Es besteht aus drei aufeinanderfolgenden Gittern sowie einer Wehneltlinse, die eine endgültige Fokussierung in die Öffnung des Massenfilters gewährleisten soll. Wird das Potential des mittleren Gitters positiv

erhöht, so werden nacheinander die langsameren Ionen ausgefiltert, der Ionenstrom hinter dem Energiefilter nimmt ab. In Fig. 17 b ist der Ionenstrom in Abhängigkeit von der Abbremsspannung am mittleren Gitter aufgetragen. Die so erhaltene Abbremskurve (durchgezogene Kurve) entspricht einem Ionenstrom mit geringer Energiebreite (< 1 eV). Im Experiment zeigte sich jedoch, daß die Kurvenform in einigen Geschwindigkeitsbereichen stark von dem Potential des folgenden Wehneltzylinders beeinflußt wurde. In Fig. 17 b sind für verschiedene Potentialwerte Abbremskurven für einen Ionenstrahl aufgenommen worden (gestrichelte Kurven). Nach der Differentiation ergibt sich bei den einzelnen Kurven auch eine etwas unterschiedliche Lage der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit. Diese Abhängigkeiten werden hervorgerufen durch die Defokussierung des Ionenstrahles bei der Abbremsung, zumal die analysierten Ionen anschließend in die Aperture des Massenfilters gelangen sollen, deren Durchmesser 3 mm beträgt.

Nachdem der Test verschiedener Anordnungen dieses Analysatortyps keine befriedigenden Resultate ergab, wurde ein elektrostatischer $127^{o}$-Sektorfeldanalysator gebaut, wie er in Ref. 40, 46 beschrieben ist. Dieses System besitzt zwar - wie bereits oben erwähnt - den Nachteil, daß geringere Nutzsignale zu erwarten sind, allerdings verfügt es über gute elektronenoptische Eigenschaften für einen weiten Energiebereich der zu analysierenden Ionen. Das System, welches in Fig. 18 dargestellt ist, besteht aus einer Eintritts- und einer Austrittsblende, zwei zylinderförmigen Ablenkplatten im Abstand d sowie zwei Hilfsplatten, die oberhalb und unterhalb der Ablenkplatten angebracht sind. Die Maße der Spalte betragen $1{,}5 \cdot 10$ mm und $1 \cdot 10$ mm.

Vernachlässigt man zunächst den Einfluß der Hilfsplatten, so können die elektronenoptischen Eigenschaften dieses Systems leicht berechnet werden (Ref. 47).

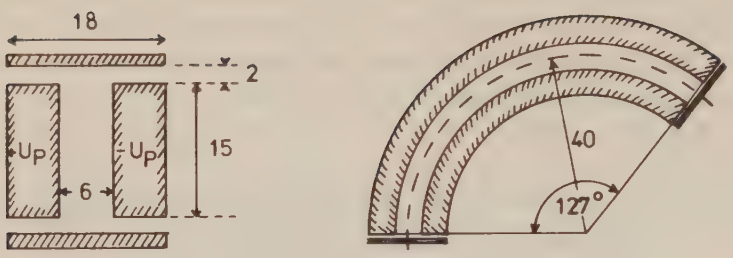



Fig. 18: *Horizontaler und vertikaler Schnitt durch den 127°-Sektorfeldanalysator (Sollradius = 40 mm).*

Die Bahn der positiven Ionen hängt bei vorgegebener Ladung nur von dem Verhältnis der Teilchenenergie zur Spannung zwischen den Ablenkplatten 2 $U_p$ ab, nicht von der Teilchenmasse. Beim Durchlaufen des Analysators erfolgt eine Fokussierung in radialer Richtung, so daß eine Abbildung der Eintrittsblende auf den Ausgangsspalt möglich ist. Auf eine detaillierte Beschreibung der Eigenschaften dieses Systems soll hier verzichtet werden, da eine Zusammenstellung der charakteristischen Größen von Niedermeyer in Ref. 48 gegeben wird. Überträgt man die dort angegebenen Beziehungen auf ein Sektorfeld von 127° und verwendet die hier vorliegenden Konstruktionsdaten, so erhält man für das Energieauflösungsvermögen: $E/\Delta E \approx 67$. Als theoretische Beziehung zwischen der Energie und der Plattenspannung $U_p$ für die Transmission von Ionen ergibt sich:

$$E_k/eV = 3{,}33 \cdot U_p/V \text{ (für einfach geladene Ionen)}$$
$$E_k/eV = 6{,}66 \cdot U_p/V \text{ (für zweifach geladene Ionen)} \qquad (44)$$

Mögliche störende Einflüsse von der Raumladung der Ionen sowie dem Erdmagnetfeld wurden abgeschätzt. Wegen der kleinen Ionenströme (in jedem Fall $< 10^{-9}$ A) sowie der kurzen Laufwege im Analysator können beide Effekte vernachlässigt werden.

Der zusätzliche Aufbau der beiden horizontalen Hilfsplatten hat den großen Vorteil, daß die Brennweite des Energieanalysators durch die Variation des Hilfsplattenpotentials $U_{HP}$ verändert werden kann (Ref. 46). Dadurch wird man unabhängig von kleinen geometrischen Dejustierungen; die Transmission sowie das Auflösungsvermögen des Energieanalysators kann elektrisch optimiert werden. Ändert man das Potential der Hilfsplatten vom negativen Wert der inneren Ablenkplatte bis zum positiven Wert der äußeren, so steigt der transmittierte Ionenstrom um den Faktor zehn mit gleichzeitiger Verbesserung des Auflösungsvermögens. Dies ist in Fig. 19 wiedergegeben. Die Stromabnahme hinter dem Analysator ist

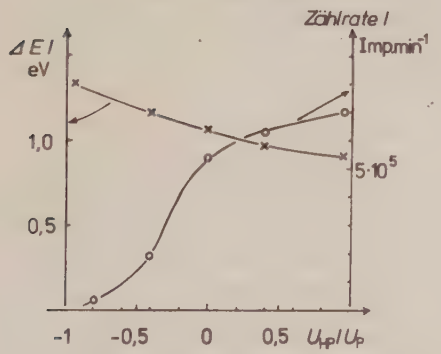



Fig. 19: *Veränderung des Transmissionsstromes und der Halbswertsbreite ΔE im Sektorfeldanalysator mit dem Potential $U_{HP}$ der Hilfsplatten.*

gering, solange das Hilfsplattenpotential gleich oder positiver als das Mittelpotential zwischen den Ablenkplatten ist. Dies ist verständlich, da der Geschwindigkeitsanteil der Ionen parallel zur Zylinderachse durch die Winkeldefinitionsblenden sehr klein gehalten wird. Erst wenn das Hilfsplattenpotential negativer als das Mittelpotential ist, wird eine vergrößerte Divergenz des Ionenstrahls parallel zur Zylinderachse erzeugt. Während der Messungen wurden die Hilfsplatten und die äußere Ablenkplatte auf demselben positiven Potential gehalten.

Experimentell wurde die Beziehung zwischen Ionenenergie und dem Transmissionspotential an den Ablenkplatten bestimmt. Für die Ionenenergie wurde die Spannungsdifferenz zwischen Ionenquelle und Energieanalysator angenommen, sie wurde über der Transmissionsspannung in Fig. 20 aufgetragen (Messung mit $Ar^+$-Ionen). Wie auch theoretisch

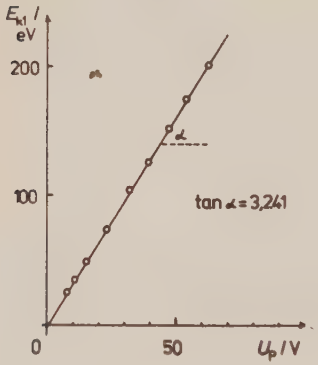



Fig. 20:
*Beziehung zwischen der Ionenenergie und dem Transmissionspotential an den Ablenkplatten.*

vorhergesagt, ergibt sich eine Geradenbeziehung, allerdings verläuft die Kurve nicht genau durch den Ursprung des Koordinatensystems, sondern ein endlicher Achsenabschnitt wird durch ein vom Anodenpotential abweichendes Plasmapotential in der Ionenquelle (s. Kap. 3.1.3) hervorgerufen. Nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate wurde die Steigung in Fig. 20 für einfach und zweifach geladene Kr-Ionen bestimmt. Zur Absolutkalibrierung des Analysators, d. h. zur Bestimmung des Achsenabschnittes, benötigt man jedoch Ionen einer genau definierten Energie. Wie bereits in Kap. 1 und 2 beschrieben, verfügt ein großer Anteil der Produkt-Ionen, die durch Ladungsaustauschprozesse erzeugt werden, über sehr geringe kinetische Energien im Bereich = 0,1 eV. Beschleunigt man diese Ionen um eine bekannte Potentialdifferenz, so kann damit eine Kalibrierung des Analysators vorgenommen werden. Diese Messung ergab

folgende Gleichungen:

$$\begin{aligned} Kr^{+}: \quad & E_k/eV = 3{,}241\ (\pm\ 0{,}003)\cdot U_p/V + 1{,}60\ (\pm\ 0{,}1) \\ Kr^{++}: \quad & E_k/eV = 6{,}480\ (\pm\ 0{,}005)\cdot U_p/V + 2{,}5\ \ (\pm\ 0{,}2). \end{aligned} \tag{45}$$

Hierbei sind die Größen $U_p$ in Volt, die kinetische Energie $E_k$ in eV anzugeben. Die experimentell ermittelten Werte für die Geradensteigung stimmen innerhalb von 3 % mit den theoretisch berechneten überein. Das additive Glied kann jedoch durch mögliche Kontaktpotentiale verfälscht sein.

Eine Überprüfung der obigen Kalibrierungsgeraden wurde vorgenommen, indem ein Ionenstrahl zunächst durch den Energieanalysator geschickt wurde und anschließend mit einem Gegenfeld analysiert wurde. Im Gegensatz zur weiter oben beschriebenen Methode wurde hier der Ionenstrom auf dem mittleren Gitter des Abbremsanalysators gemessen, so daß die Defokussierung des abgebremsten Ionenstrahls keinen starken Einfluß auf die Abbremskurve hatte. Im Rahmen der Genauigkeit der Gegenfeldmethode waren die oben angegebenen Gleichungen erfüllt.

Die Fehler wurden durch die Ausgleichsrechnung bestimmt, die absolute Genauigkeit der Energiebestimmung könnte jedoch infolge der möglichen Kontaktpotentiale geringer sein. Die Kalibrierungsmessungen wurden mit verschiedenen Ionenarten durchgeführt, es ergaben sich keine Unterschiede.

Die Energieauflösung des $127^{\circ}$-Analysators wurde mit einem primären $Ar^{+}$-Ionenstrahl bestimmt. In Fig. 21 ist die Halbwertsbreite der Energieverteilung $\Delta E$ des Ionenstrahls über der Strahlenergie für zwei verschiedene Extraktionsspannungen an der Ionenquelle aufgetragen. Bei niedrigen Strahlenergien ist $\Delta E$ unabhängig von $E_{kl}$, es repräsentiert die

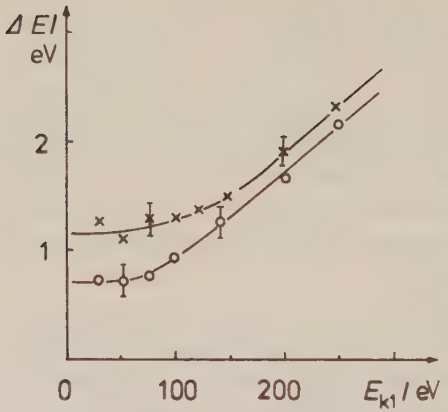



Fig. 21: *Halbwertsbreite ΔE des primären $Ar^+$-Strahls in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Ionen (x Messungen bei $U_{Ex}$ = 1500 V; o $U_{Ex}$ = 500 V).*

wahre Energiebreite des Primärstrahls. Zu höheren Strahlenergien hin wächst ΔE an infolge der mangelnden Auflösung des Analysators. Aus der Steigung der Kurven bei Ionenenergien > 200 eV ergibt sich für das Auflösungsvermögen des Energiefilters $E_k/\Delta E$ ein Wert von ≈ 120.

3.3.3. Massenanalyse

Nachdem die Ionen die Winkel- und Energieanalyse durchlaufen haben, werden sie mit einem Wehneltzylinder in die Öffnung eines elektrischen Quadrupolmassenfilters fokussiert. Eine detaillierte Beschreibung der Wirkungsweise und der Eigenschaften des Massenfilters ist in den Ref. 49 - 50 zu finden.

Für die Auswahl eines elektrischen Massenfilters waren verschiedene Gründe maßgebend:

1) Die Analyse wird nur bezüglich der Größe e/m vorgenommen, es wird keine Selektion nach Energie oder Impuls durchgeführt. Es liegt also keine chromatische Aberration vor. Diese Eigenschaft ist besonders wichtig beim Studium von Stoßprozessen, da hier im allgemeinen die kinetische Energie bzw. der Impuls der Produkt-Ionen vom Nachweiswinkel abhängt. Lediglich bei Ionenenergien oberhalb ≈ 300 eV tritt infolge der zu kurzen Verweilzeit der Ionen im Stabsystem keine Massentrennung mit hoher Auflösung mehr auf.

2) Bei Benutzung eines solchen Massenfilters werden elektrische und magnetische Streufelder im Stoß- und Energieanalysenbereich vermieden.

3) Ein weiterer Vorteil liegt in der Tatsache, daß die Transmission der Ionen nahezu unabhängig von den Einschußbedingungen ist. Nur bei sehr hoher Auflösung der Massenselektion sind Größen wie Einschußrichtung oder Abstand von der optischen Achse wichtig, da sie zu großen Schwingungsamplituden der an sich stabilen Ionenbahnen führen können (Ref. 51).

Ein kommerzielles Gerät, welches als Restgasanalysator konzipiert war, wurde umgebaut, insbesondere mußten die Hochfrequenzkabel zwischen Analysator und Steuergerät verlängert werden, wodurch die maximal erzielbare Auflösung des Gerätes herabgesetzt wurde. Für die vorliegenden Experimente war die Massentrennung jedoch ausreichend. In Fig. 22 sind die einzelnen Kr-Isotope für einen $Kr^+$-Ionenstrahl dargestellt; entsprechend der Häufigkeitsverteilung ist Masse 84 am stärksten vertreten, die Massen 80, 82, 83 und 86 sind gut getrennt und die Höhen der Peaks entsprechen der Isotopenverteilung.

Fig. 22:
*Isotopenverteilung der $Kr^+$-Ionen.*

3.3.4. Registrierung der Ionen

Ionen, die Winkel-, Energie- und Massenanalyse durchlaufen haben, werden um 2000 bis 3000 V beschleunigt und treffen anschließend auf die Kathode eines Sekundärelektronenvervielfachers. Die ausgelösten Elektronen werden in den 17 Cu-Be-Dynoden um den Faktor $10^6$ verstärkt, die Impulse werden an der Anode abgegriffen und über einen Elektrometerverstärker oder eine Ratemeter (Type MSPR 1001, Telefunken) gemessen. Die Zählraten wurden auf einem Schreiber registriert. Bei den geringen Sekundärionènströmen wurde meist die letztere Anordnung gewählt, die Zählraten lagen im Bereich von $10^3$ bis $10^5$ Imp/min. Die Anzahl der Dunkelimpulse konnte erst nach guter Abschirmung der einzelnen Komponenten sowie nach direkter Erdung der verschiedenen Geräte und des Rezipienten auf ein vertretbares Maß herabgesetzt werden.

Lediglich unter einem Winkel von $0^o$ bezüglich der Primärstrahlrichtung wurde eine erhöhte Dunkelimpulsrate gemessen,

die von dem Licht aus der Ionenquelle herrührt, welches nach mehrmaliger Reflexion im 127°-Analysator in das Massenfilter gelangte. Dieser 0°-Peak war unterschiedlich groß für die verschiedenen Quellengase, da im Falle des He eine größere Heizleistung als beim Ar zur Aufrechterhaltung der Quellenentladung notwendig war. Da dieser Lichtpeak jedoch auf einen Winkelbereich $< \pm 1^{\circ}$ beschränkt war, wurde die Messung der Winkelverteilung nicht stark beeinflußt.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Multipliers sollte nach Ref. 41 bei großen kinetischen Energien unabhängig sein vom Ladungszustand der nachzuweisenden Ionen. Allerdings ist der Einfluß der unterschiedlichen Massen - besonders in Verbindung mit dem Massenfilter - nur schwierig theoretisch zu erfassen. Für die Kalibrierung der differentiellen Wirkungsquerschnitte ist deshalb eine experimentelle Bestimmung der unterschiedlichen Nachweiswahrscheinlichkeit für verschiedene Ionensorten notwendig.

### 3.4. Mechanischer Gesamtaufbau

Die Stoßzelle befindet sich in der Mitte eines Goniometerkreises, dessen Durchmesser 760 mm beträgt und an dessen Außenkante ein Zahnkranz mit 760 Zähnen angebracht ist. Der Zahnkranz wird durch 3 Auflageplatten gehalten, welche an den Seitenwänden des Rezipienten befestigt sind. Auf eine Benutzung des Bodens oder Deckels des Hauptrezipienten zur Halterung wurde verzichtet, da sich eine Verschiebung des Deckels um ≈ 0,5 mm bei der Evakuierung des Rezipienten herausstellte. Wie in Fig. 23 zu sehen ist, wird die Nachweiseinheit in einem Rohr aus Edelstahl gehalten, welches wiederum auf einem drehbaren Tragarm montiert ist und leicht justiert werden kann. Ein zweites Rohr, welches das Linsensystem zur Energieeinstellung aufnimmt, dient zur Abschirmung des primären Ionenstrahls. Diese Abschirmung ist besonders

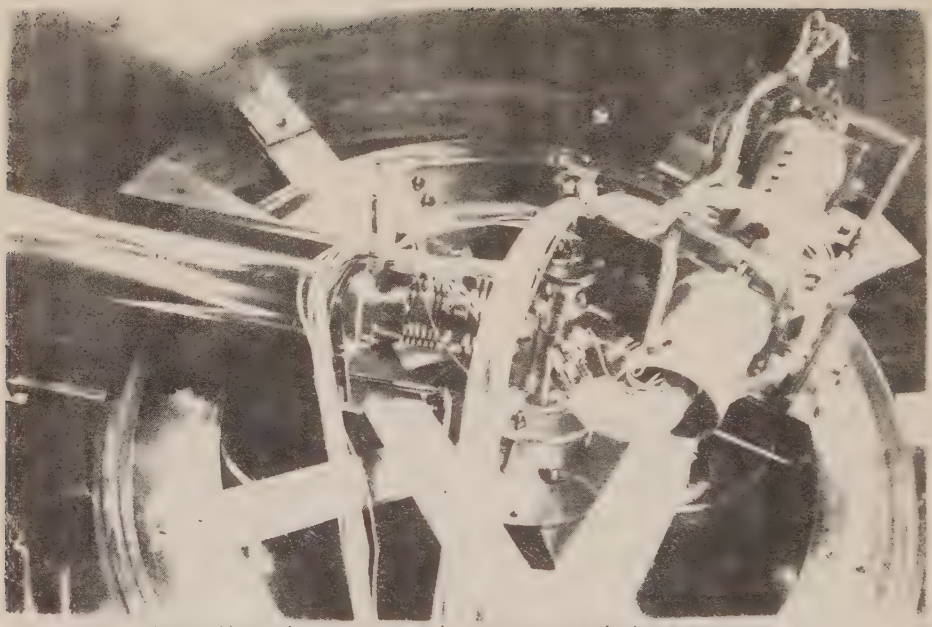


Fig. 23: *Meßaufbau im Inneren des Hauptrezipienten.*

wichtig, da sämtliche einzelnen Komponenten im elektrischen Potential bezüglich Erde verschoben werden müssen. Der Bezugspunkt ist festgelegt durch die Einschußblende des Quadrupolmassenfilters, die aus elektronischen Gründen auf Masse gehalten werden muß, wenn ein größerer experimenteller Aufwand vermieden werden soll.

Eine Justierung der Gesamtapparatur wurde mit Hilfe eines Laserstrahls vorgenommen, der durch die Anodenöffnung der Ionenquelle geschickt wurde und die Stoßzellenmitte durchquerte. Sowohl die Primärseite als auch das Nachweissystem wurden bezüglich dieser optischen Achse ausgerichtet. Eine Überprüfung der Justierung durch Messung des primären Ionenstrahls ergab, daß die optische Achse mit der $0^{o}$-Richtung der primären Ionen innerhalb der Meßgenauigkeit übereinstimmt. Anfängliche Reflexion an Blendenöffnungen konnten nach mehrmaliger Durchführung dieser Justierung beseitigt werden.

Die Stellung des Nachweissystems wird mit Hilfe eines Schrittmotors verändert, der auf dem beweglichen Tragarm montiert ist und über ein Zahnrad in den Zahnkranz des Goniometers eingreift. Die Schrittweite des Motors führt mit der vorliegenden Untersetzung zu einer Winkeländerung von ≈ $0{,}1^{\circ}$ pro Schritt; die Schrittfolge kann kontinuierlich oder durch Einzelimpulse geregelt werden.

Der Nachweiswinkel $\theta$ wird bestimmt mit einem Potentiometerkreis, welcher sich im Hauptrezipienten befindet. Der Mittelabgriff eines 10-Gang-Wendelpotentiometers wird durch ein Zahnrad verändert, so daß mit einer Spannungsteilerschaltung der Winkel $\theta$ auf $\pm\ 0{,}1^{\circ}$ festgelegt werden kann. Über den Zahnkranz am Goniometer wurde eine Kalibrierung dieser Winkelbestimmung vorgenommen. Für die elektrische Versorgung der einzelnen Bestandteile wurden abgeschirmte Teflon-Kabel verwendet, um ein gutes Endvakuum im Rezipienten zu gewährleisten. Infolge des großen Winkelbereiches mußten die Versorgungen sämtlicher beweglicher Teile zunächst bis zur Mitte des Rezipienten geführt und über der Stoßzelle gehaltert werden, so daß bei der Veränderung der Nachweisstellung keine Dejustierung der Strahlanordnung auftrat (s. Fig. 23).

Die zum Aufbau der Apparatur verwendeten Materialien waren im wesentlichen Aluminium und Edelstahl, wobei die Linsen zum Teil vergoldet wurden, sowie Teflon und Bornitrid. Zur Erzeugung des Vakuums im Hauptrezipienten wurden drei Öl-Diffusionspumpen mit Saugleistungen von 2 · 3300 l/sec und 1300 l/sec verwendet mit darüber geschalteten Peltierbafflen. Mit dem effektiven Saugvermögen von ≈ 3500 l/sec konnte bei ständigem Betrieb des Pumpensystems ein Restgasdruck im Rezipienten von $3 \cdot 10^{-7}$ Torr erreicht werden. Beim Betrieb der Ionenquelle sowie bei Füllung der Stoßzelle stieg der Untergrunddruck jedoch auf einige $10^{-6}$ Torr an.

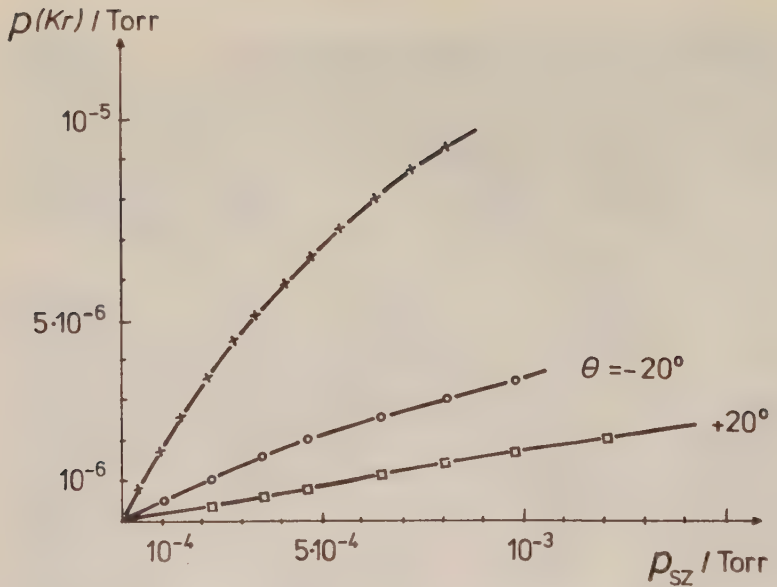



Fig. 24: *Kr-Partialdruck im Hauptrezipienten in Abhängigkeit vom Stoßzellendruck (Druckanstieg mit — o —, —□— und ohne — x — Blende zur Gasabschirmung).*

In Fig. 24 ist der Druckanstieg im Hauptrezipienten als Funktion des Stoßzellendrucks dargestellt. Die Kurve (-x-) stellt den Druckanstieg ohne jegliche Blende über der Ausgangsöffnung der Stoßzelle dar, die beiden anderen Kurven entsprechen der verwendeten Anordnung mit gasabschirmender Blende bei zwei unterschiedlichen Nachweisstellungen. Bei $\theta = 20^{\circ}$ ist der Ausgangsspalt der Stoßzelle mehr bedeckt als bei $\theta = -20^{\circ}$, der Druckanstieg im Rezipienten ist geringer. Die Verhältnisse bei $\theta = -20^{\circ}$ sind die ungünstigsten, die im Experiment vorliegen.

Der Wert von $3 \cdot 10^{-6}$ Torr ist noch klein gegenüber dem Targetgasdruck, die mittleren freien Weglängen der Ionen betragen 20 - 60 m, so daß die primären Ionen praktisch stoßfrei die Stoßzelle erreichen. Die Gasdrucke wurden mit einem Ionisationsmanometer gemessen, welches zuvor mit einem MKS-Baratron kalibriert wurde.

## 4. Durchführung der Messungen

Zur Bestimmung der differentiellen Wirkungsquerschnitte für Ladungsaustauschreaktionen wurden die Verteilungen der kinetischen Energie der Produkt-Ionen bei fester Primärenergie und verschiedenen Nachweiswinkeln $\theta$ gemessen. Der Winkel $\theta$ wurde in Abständen von $5^{o}$ variiert, die verwendeten primären Stoßenergien lagen im Bereich von 20 bis 500 eV. Die Energiespektren wurden graphisch integriert und anschließend bezüglich des Reaktionsvolumens sowie des Targetgasdruckes korrigiert. Die so erhaltenen relativen Werte wurden durch einen Vergleich mit bereits in der Literatur bekannten differentiellen Streuquerschnitten kalibriert (s. Kap. 6.3.).

Vor jeder Messung wurde eine Optimierung des Primärstrahles durch Variation der Linsenpotentiale sowie der Ionenquellenparameter durchgeführt. Mit der Nachweiseinheit wurde die kinetische Energie der Primärionen gemessen und eine Kontrolle der $0^{o}$-Richtung des Strahles vorgenommen. Lediglich bei niedrigen Stoßenergien unter 100 eV wurde eine leichte Verschiebung dieser $0^{o}$-Position um $1^{o}$ - $2^{o}$ festgestellt, was jedoch durch eine Winkelkorrektur berücksichtigt werden konnte. Die Einstellung sowie die Konstanz des primären Ionenstrahls waren kontrollierbar durch die Ionenströme auf den letzten Blenden des Energieeinstellsystems, auf der Stoßzelle sowie den Winkeldefinitionsblenden. Diese Ströme wurden auch während der Messung mit Picoammetern bestimmt und mit einem Schreiber registriert.

Für die Aufnahme der Energieverteilung der Produkt-Ionen sind grundsätzlich zwei verschiedene Methoden möglich: Einerseits kann die Spannung an den Ablenkplatten des Energieanalysators und damit die Transmissionsenergie variiert werden, zum anderen kann bei fest eingestellter Plattenspannung eine veränderliche Nachbeschleunigung der Produkt-Ionen mit Hilfe eines Gitters zwischen Stoß-

zelle und Energieanalysator erfolgen. Dabei ist es jedoch im allgemeinen wünschenswert, das Potential am Zylinderkondensator konstant zu halten, um eine konstante Energiebreite des Nachweissystems zu gewährleisten. Die Breite der ausgemessenen Energiespektren ist jedoch gering, sie liegt im allgemeinen zwischen 10 eV und 20 eV bei Transmissionsenergien von ~ 200 eV. So wurden mit beiden obigen Methoden innerhalb der Fehlergrenzen dieselben Resultate erhalten.

Betrachtet man die Energie der gebildeten Produkt-Ionen in Abhängigkeit vom Nachweiswinkel $\theta$, so erfolgt vor allem bei großen Primärenergien sowie großen Streuwinkeln eine starke Abnahme der kinetischen Energie (s. Kap. 2.4.). Hier war es notwendig, eine Nachbeschleunigung der Produkt-Ionen mit einem Gitter vorzunehmen, damit die Energieanalyse bei ungefähr gleicher Energie erfolgte. Infolge der kleinen Durchmesser der Winkeldefinitionsblenden und der vorliegenden Geometrie gelangen alle Ionen, welche die Winkelanalyse passieren, auch in die Eintrittsblende des Energieanalysators. Eine zusätzliche Beschleunigung mit einem Gitter kurz vor dem Energieanalysator sollte deshalb keinen Einfluß auf den Transmissionsstrom zeigen. Diese Annahme wurde mit dem Primärstrahl sowie den Sekundärionen unter verschiedenen Winkeln getestet und bestätigt. In Fig. 25 ist das Blockschaltbild der Apparatur dargestellt. Auf einem Schreiber werden das Ausgangssignal des Zählratenmessers, die Transmissionsenergie sowie ein Referenzsignal des Primärstrahls aufgezeichnet.
Die oben beschriebene Meßmethode ist nicht möglich, wenn Produkt-Ionen nachgewiesen werden sollen, deren kinetische Energie im meV-Bereich liegt, oder wenn gar Rückwärtsstreuung im Laborsystem vorliegt. In diesem Fall müssen die Ionen durch eine negative Spannung zwischen der Stoßzelle und den Winkeldefinitionsblenden extrahiert und beschleunigt werden. Es zeigte sich, daß der meßbare Ionenstrom stark vom Wert der Extraktionsspannung an der Stoßzelle abhängt, so daß quantitative Aussagen hier nur schwer möglich sind.

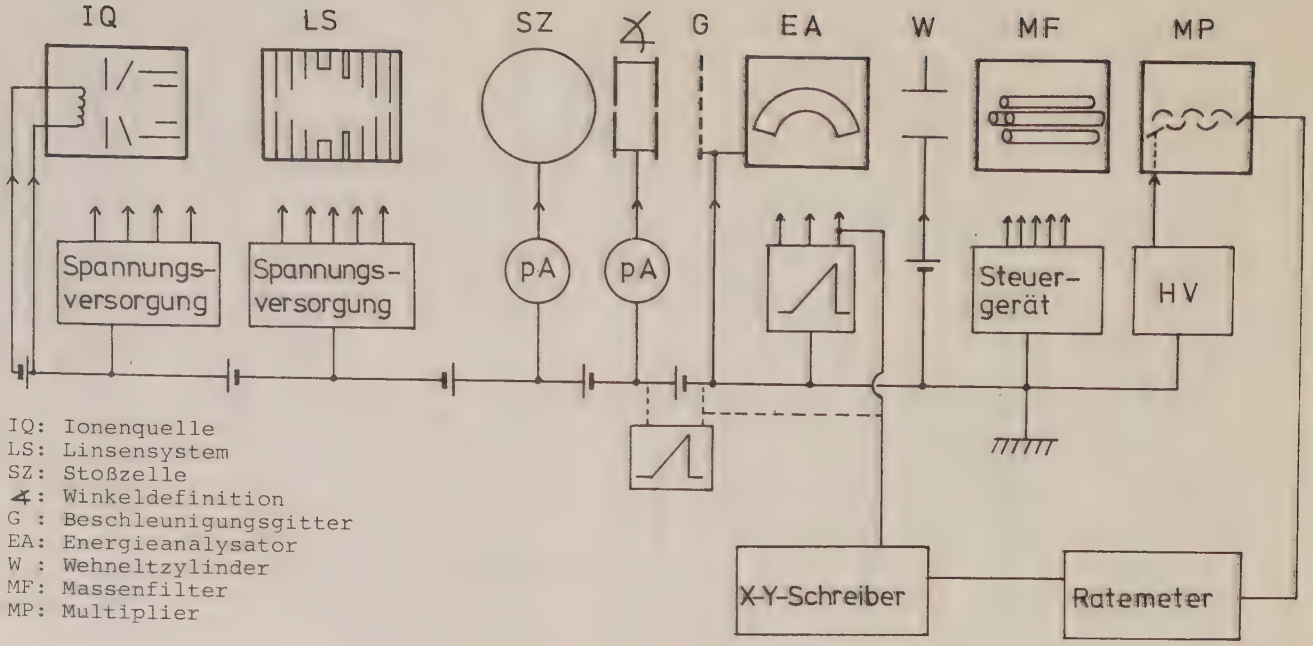



Fig. 25: Blockschaltbild der Meßanordnung

## 5. Testmessungen

Zunächst wurden verschiedene, in der Literatur bereits bekannte Reaktionen untersucht, um die Wirkungsweise der einzelnen Analysatoren zu überprüfen. Getestet werden sollte die Funktion der Energie-, der Winkel- und der Massenanalyse.

### 5.1. Streuung von $He^+$-Ionen an Ne-Atomen

Das Energiespektrum von elastisch und inelastisch an Ne-Atomen gestreuten $He^+$-Ionen zeigt eine Reihe scharfer, gut ausgeprägter Maxima und Minima (s. Aberth und Lorents, Ref. 52). Mit dieser Reaktion kann deshalb die Energieanalysatoreinheit überprüft werden. In. Fig. 26 ist der Strom der gestreuten $He^+$-Ionen in Abhängigkeit von der Größe $(E_k - E_{k,el})$ für Streuwinkel von 20° bzw. 30°

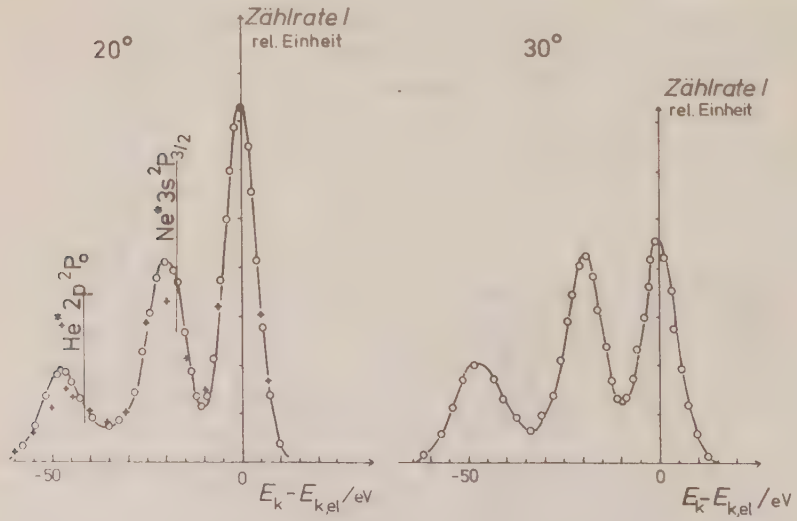



Fig. 26: *Energieverlustspektrum elastisch und inelastisch gestreuter $He^+$-Ionen an dem Targetgas Ne bei $\vartheta$ = 20 und 30° (o eigene Meßwerte, + Meßpunkte von Aberth und Lorents (Ref. 52)).*

dargestellt. Hierbei bedeutet $E_k$ die tatsächliche kinetische Energie der gemessenen $He^+$-Ionen, $E_{k,el}$ dagegen die bei den vorliegenden Winkeln zu erwartende Energie der elastisch gestreuten Ionen. Neben dem Peak der elastisch gestreuten Ionen treten zwei Gruppen inelastisch gestreuter Ionen auf, deren Einsatzenergie etwas oberhalb des ersten angeregten Niveaus von Ne und $He^+$ liegen. Außerdem fallen in den Energiebereich des zweiten inelastischen Peaks eine größere Anzahl auto-ionisierender Ne-Zustände, deren Anregung sehr wahrscheinlich zur gefundenen Peakstruktur beiträgt (Ref. 53).

Ein Vergleich mit den für $\vartheta = 20^o$ eingezeichneten Werten von Ref. 52 ergibt eine gute Übereinstimmung sowohl hinsichtlich der Lage als auch der Größe der einzelnen Ionenstrommaxima. Die Anpassung erfolgte im elastischen Peak. Wie auch in Ref. 52 wurde hier eine größere Bedeutung der inelastischen Kanäle mit wachsender Stoßenergie und größerem Nachweiswinkel $\vartheta$ festgestellt. Der elastische Peak hingegen nimmt,wie in Fig. 26 zu sehen ist, mit $\vartheta$ stark ab.

## 5.2. Elastische Streuung von $Ar^+$ an Ar

Experimentelle und theoretische Untersuchungen der elastischen Streuung an symmetrischen Edelgassystemen haben gezeigt, daß zahlreiche stark ausgeprägte Oszillationen im differentiellen Wirkungsquerschnitt auftreten (Ref. 54, 55). Genaue experimentelle Ergebnisse werden in Ref. 52 für das System $Ar^+$ + Ar angegeben. Durch einen Vergleich der Lage der Minima und Maxima soll die Winkelmessung und -auflösung überprüft werden.

Zur Bestimmung des elastischen, differentiellen Wirkungsquerschnittes ist es notwendig, die inelastisch gestreuten Ionen zu separieren (s. Kap. 5.1.). Dies ist bei kleinen

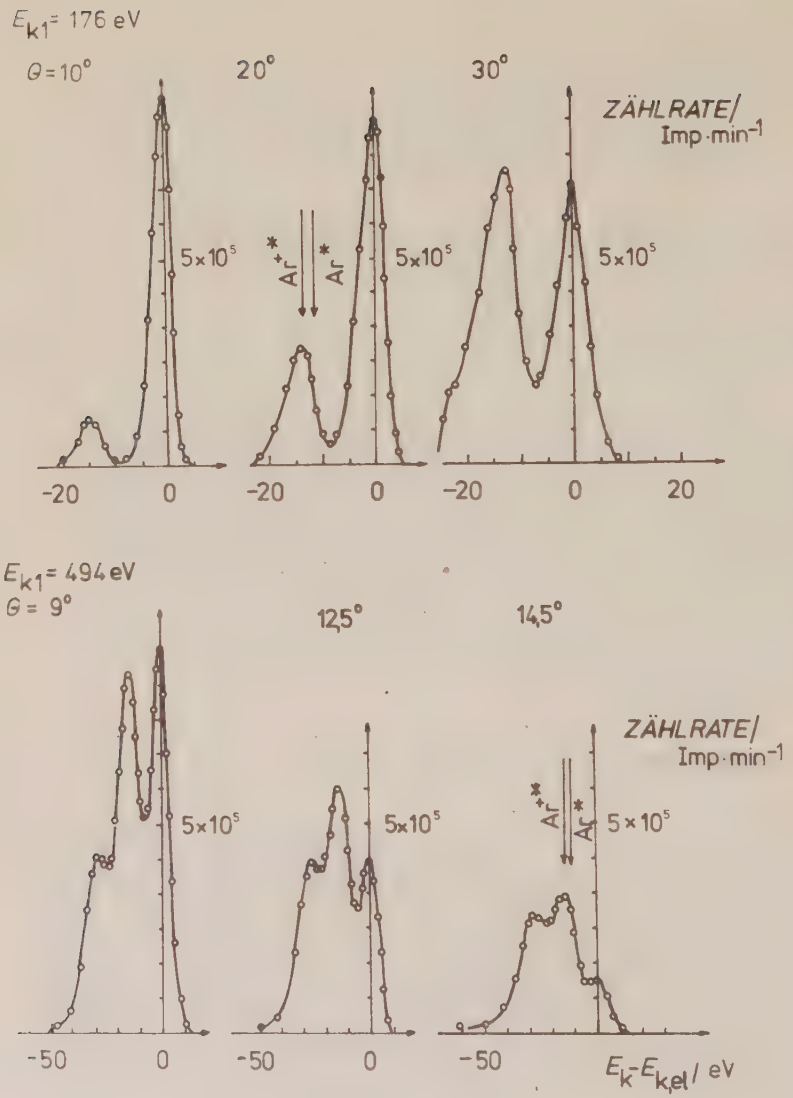



Fig. 27: *Energieverlustspektren der $Ar^+$-Ionen nach der Streuung an Ar-Atomen bei Stoßenergien von 176 und 494 eV. Die Pfeile geben jene Energien an, die nach der Anregung der Zustände $Ar^+(^2S)$ bzw. $Ar(4s\ ^2P_{3/2})$ zu erwarten sind.*

Stoßenergien sowie kleinen Streuwinkeln leicht möglich; mit zunehmender Stoßenergie wird die Trennung der einzelnen Ionengruppen schwerer, da die inelastischen Kanäle an Bedeutung gewinnen. In Fig. 27 sind Energiespektren der gestreuten $Ar^+$-Ionen für Energien von 176 eV und 494 eV bei verschiedenen Nachweiswinkeln dargestellt. Es zeigt sich, daß bei Stoßenergien um 500 eV eine Bestimmung des Wirkungsquerschnittes für elastische Streuung nur noch schwer möglich ist. Bei einer Primärenergie von 200 eV wurden die elastisch gestreuten Ionen im Winkelbereich von $2^o$ bis $14^o$ gemessen. Die bezüglich des Reaktionsvolumens und des Stoßzellendruckes korrigierten Werte sind in Fig. 28 wieder-

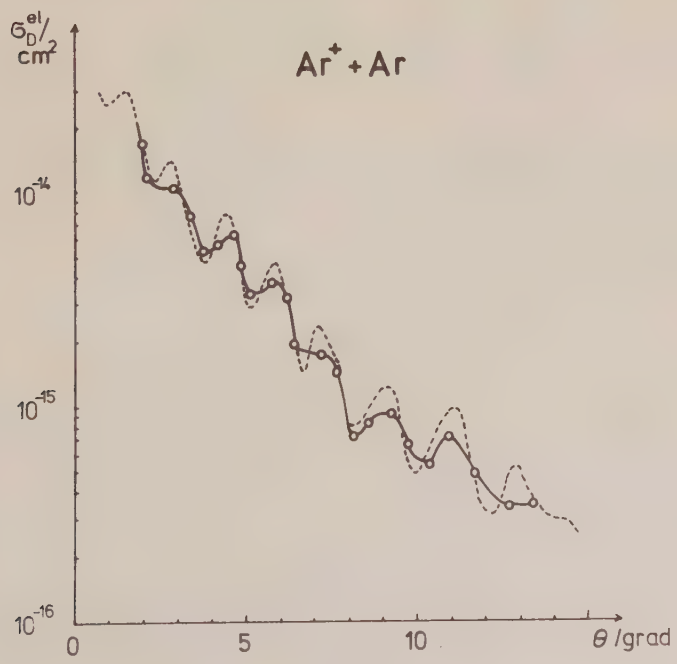



Fig. 28: *Differentieller Wirkungsquerschnitt für die elastische Streuung und $Ar^+$ und Ar. o eigene Messung, --- Werte von Aberth, Lorents (Ref. 52). Die eigene Kurve wurde an den Kurvenverlauf von Ref. 52 angepaßt.*

gegeben. Die durchgezogene Kurve stellt die eigenen Meßwerte dar, die gestrichelte Kurve wurde Ref. 52 entnommen. Ein Vergleich zeigt, daß die Lage der Oszillationen innerhalb der Fehlergrenzen gut wiedergegeben wird. Die stärkere Dämpfung der Oszillationen ist auf die etwas schlechtere Winkelauflösung der verwendeten Apparatur zurückzuführen.

Auf die theoretische Beschreibung dieses Interferenzeffektes soll hier verzichtet werden. Im Gegensatz zum System $He^+ + He$ ist hier die Struktur wesentlich komplexer, da das $Ar^+$-Ion mindestens in zwei Zuständen, $^2P_{1/2}$ und $^2P_{3/2}$, vorliegen kann, und somit insgesamt sechs Molekülzustände des $Ar_2^+$-Ions möglich werden: $^2\Sigma^+_{u,g}$, $^2\Pi_{u,g}(3/2)$ und $^2\Pi_{u,g}(1/2)$ (Ref. 56). Neben diesen verschiedenen Wechselwirkungspotentialen können außerdem die Kernsymmetrie sowie Kreuzungen der Potentialkurven zu den vorliegenden Interferenzphänomenen beitragen.

Insgesamt konnte diese Vergleichmessung bestätigen, daß die Winkelmessung einwandfrei ist und die Winkelauflösung für die geplanten Experimente ausreicht.

## 5.3. Atomaustauschreaktion: $Ar^+ + H_2 \rightarrow ArH^+ + H$

Nach den Untersuchungen von Henglein und Mitarbeitern (Ref. 57,58) kann der Wasserstoff-Atomaustausch in der Reaktion $Ar^+ + H_2 \rightarrow ArH^+ + H$ bei Stoßenergien um 20 eV mit dem "spectator-stripping-Modell" beschrieben werden. Hierbei wird angenommen, daß das $Ar^+$-Ion ein H-Atom an sich bindet, das andere H-Atom jedoch ungestört bleibt. Auf das neutrale H-Atom wird kein nennenswerter Impuls übertragen. Zu kleineren Stoßenergien hin ist dieses Modell zu grob; es spielen da die anziehenden molekularen Kräfte eine wichtige Rolle, was in einem verfeinerten Modell von Hierl, Herman und Wolfgang (Ref. 59) berücksichtigt wird. Nach dem spectator-stripping-Modell erfolgt die Bildung der $ArH^+$-Ionen bevorzugt mit Impulsen in Vorwärtsrichtung.

Dieser Umstand sowie der geringe Massenunterschied zwischen primären $Ar^+$ und sekundären $ArH^+$-Ionen lassen diese Reaktion zum Test der Massenselektionseinheit bei Nachweiswinkeln um $0^o$ besonders geeignet erscheinen.

In Fig. 29 ist das Massenspektrum bei der Transmissionsspannung der $ArH^+$-Ionen dargestellt. Da sich die Energien von $Ar^+$ und $ArH^+$-Ionen um den Faktor 0,95 unterscheiden, wird die Zählrate der $Ar^+$-Ionen durch den Energieanalysator

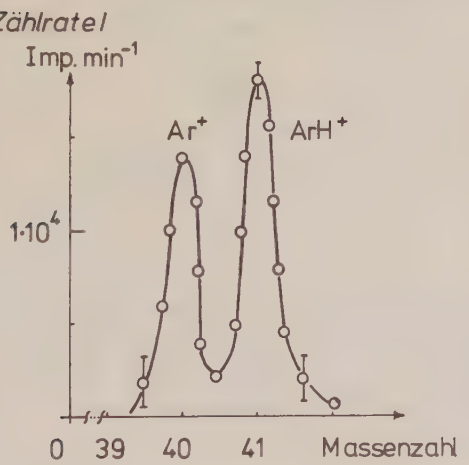



Fig. 29:
*Massenspektrum der Reaktion $Ar^+ + H_2 \rightarrow ArH^+ + H$. Die Transmissionsspannung am Energieanalysator entspricht der kinetischen Energie der $ArH^+$-Ionen.*

bereits um den Faktor $10^3$ reduziert. Fig. 29 zeigt, daß die Nachweiseinheit es ermöglicht, zwei bezüglich Masse und Energie dicht benachbarte, jedoch hinsichtlich der Stromstärke stark unterschiedliche Ionengruppen zu trennen.

Die gemessene Winkelverteilung sowie die Energieabhängigkeit der Reaktion sind in Fig. 30 angegeben. Es zeigt sich, daß die Bildung der $ArH^+$-Ionen hauptsächlich mit Impulsen in Vorwärtsrichtung im Laborsystem erfolgt. Die geringe Verbreiterung der Ionenverteilung gegenüber dem Primärstrahlprofil weist darauf hin, daß in diesem Energiebereich bereits Ab-

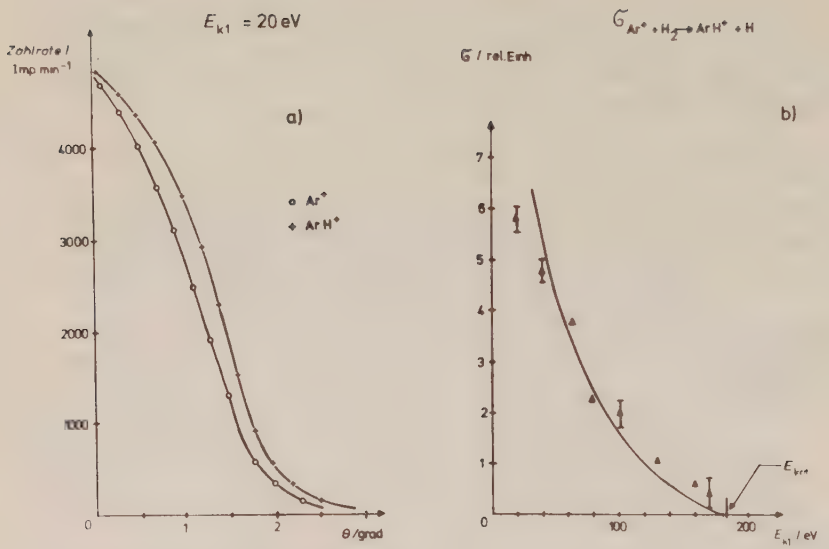



Fig. 30: a) Winkelverteilung der $ArH^+$-Ionen (+). Die Kurve für den primären $Ar^+$-Strahl (o) wurde bei $\theta = 0^o$ an die Kurve der $ArH^+$-Ionen angepaßt.
b) Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für den Atomaustausch: $Ar^+ + H_2 \rightarrow ArH^+ + H$.
▲ eigene Meßwerte, — experimentelle Kurve Kurve von Henglein (Ref. 58).

weichungen vom einfachen spectator-stripping-Modell auftreten, die zu kleineren Energien hin weiter zunehmen.

Die in Fig. 29 b dargestellte Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für die Bildung von $ArH^+$-Ionen wird mit einer experimentellen Kurve von Henglein und Mitarbeitern (Ref. 58) verglichen. Die Krümmung der eigenen Kurve scheint etwas geringer zu sein, jedoch zeigt sich insgesamt eine gute Übereinstimmung zwischen beiden Messungen. In Fig. 29 b ist zusätzlich eine kritische Energie eingezeichnet, wie sie sich aus dem spectator-stripping-Modell ergibt. Oberhalb dieser Energie ist die innere Energie, die das $ArH^+$-Molekülion

in Form von Rotations- und Schwingungsenergie aufnehmen muß, größer als die Dissoziationsenergie des Komplexes, so daß der Wirkungsquerschnitt für die Bildung von $ArH^+$ gegen Null geht. Nach diesem einfachen Modell ergibt sich im vorliegenden System ein Wert von 184 eV (Ref. 58). Die eigene Messung liefert innerhalb der Meßgenauigkeit einen Grenzwert in diesem Energiebereich.

Die durchgeführten Testmessungen haben gezeigt, daß die einzelnen apparativen Teile sowie die Gesamtanordnung zuverlässig arbeiten und für die Messung von differentiellen Wirkungsquerschnitten geeignet ist.

c. Diskussion der Umladungsmessungen

Im Energiebereich von 20 eV bis ungefähr 500 eV im Laborsystem wurden folgende Reaktionen bezüglich ihrer Winkelverteilung sowie der kinetischen Energieverteilung der Produkt-Ionen untersucht:

$$
\begin{aligned}
&1)\ He^+ + Kr \rightarrow Kr^+ + He \\
&2)\ He^+ + Kr \rightarrow Kr^{++} + He + e \\
&3)\ Ne^+ + Kr \rightarrow Kr^+ + Ne \\
&4)\ Ne^+ + Kr \rightarrow Kr^{++} + Ne + e \\
&5)\ Ar^+ + Kr \rightarrow Kr^+ + Ar \\
&6)\ Ar^+ + Kr \rightarrow Kr^{++} + Ar + e
\end{aligned}
\qquad (46)
$$

Diese Prozesse sind zu unterteilen in reine Ladungsaustauschprozesse, bei denen ein Elektron vom Targetatom auf das Projektil übertragen wird, und Ladungsaustauschreaktionen mit gleichzeitiger Ionisierung, wobei ein zweites Elektron des Targetatoms freigesetzt wird. Neben diesen aufgeführten Reaktionen können auch reine Ionisationsprozesse wie

$$
\begin{aligned}
X^+ + Kr &\rightarrow Kr^+ + X^+ + e \\
&\rightarrow Kr^{++} + X^+ + 2e
\end{aligned}
\qquad (47)
$$

zur Bildung von einfach und zweifach geladenen Kr-Ionen führen. Eine Diskussion über das Auftreten der einzelnen Reaktionswege soll anhand der einzelnen Systeme durchgeführt werden.

Da das Kr-Atom im wesentlichen in fünf verschiedenen Isotopen auftreten kann, wurde bei allen Reaktionen zunächst eine Massenanalyse der Produkt-Ionen vorgenommen. Es zeigte sich, daß die Isotopenverteilung der $Kr^+$- und $Kr^{++}$-Ionen identisch ist mit der Häufigkeitsverteilung im Targetgas (s. Fig. 22). In einigen Bereichen des Nachweiswinkels konnte lediglich eine geringe Verschiebung der Energieverteilung der Produkt-Ionen infolge der unterschiedlichen Massenverhältnisse festgestellt werden, wie sie von einer klassischen Stoßbetrach-

tung (s. Kap. 2.4.) auch verlangt wird. Da sonst keine prägnanten Isotopieeffekte auftraten, wurden die Messungen mit dem Isotop Kr 84 durchgeführt, dessen Häufigkeit laut Literatur (Ref. 60) in Übereinstimmung mit der eigenen Messung mit ≈ 57 % am größten ist und somit größtmögliche Sekundärströme gewährleistet.

## 6.1. Energieverteilung der $Kr^+$-Ionen

Bei verschiedenen Winkeln und Primärenergien wurden die Verteilungen der kinetischen Energie der $Kr^+$-Ionen, die in den Reaktionen 1, 3 und 5 gebildet werden, untersucht. Typische Spektren für $\theta < 20^o$ sind in Fig. 31 wiedergegeben; dargestellt sind die $Kr^+$-Zählraten in Abhängigkeit von der kinetischen Energie $E_{k3}$ der $Kr^+$-Ionen. Jeweils auf der rechten Seite ist die Energieverteilung des primären Ionenstrahls zum Vergleich mit eingezeichnet.

Die Energiespektren der Produkt-Ionen bestehen in allen drei Reaktionssystemen aus zwei Anteilen, einer niederenergetischen sowie einer hochenergetischen Ionengruppe.

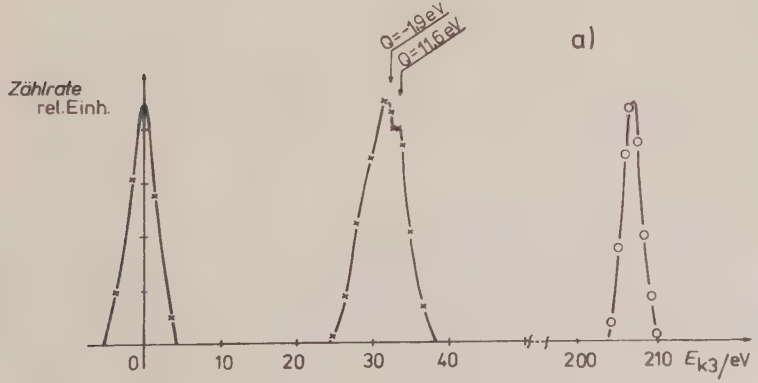



Fig. 31: a) *Typische Energiespektren der Umladungsionen x $Kr^+$, o $He^+_{primär}$, $E_o$ = 198 eV, $E_{k1}$ = 207 eV, $\theta$ = 17°.*

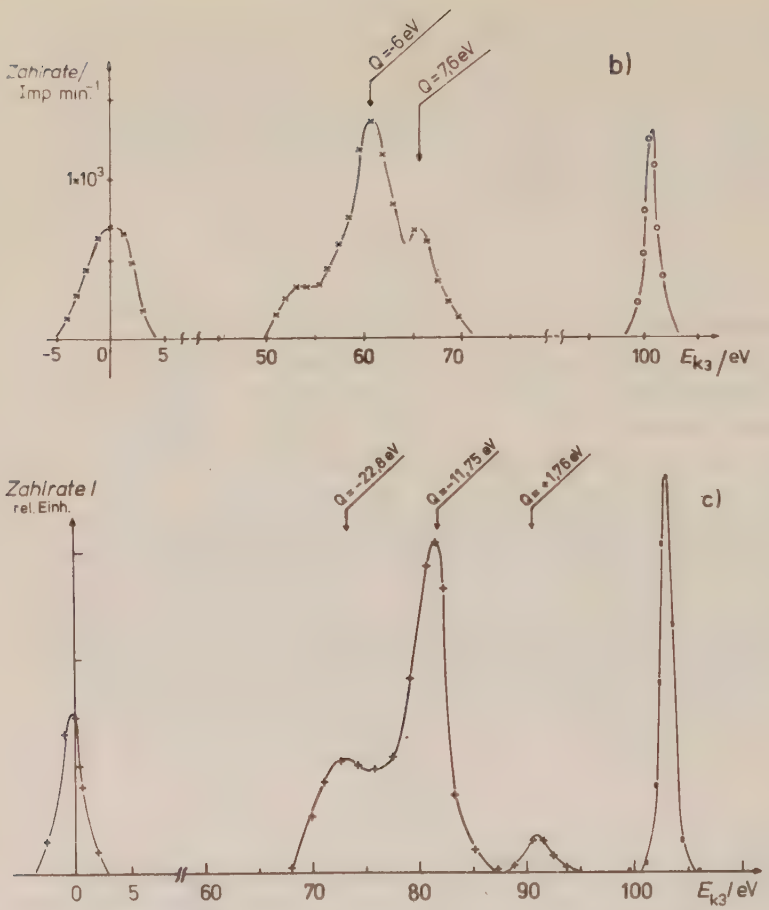



Fig. 31: b) x $Kr^+$, o $Ne^+$ primär, $E_o$ = 81,6 eV, $E_{k1}$ = 101 eV, $\theta = 0^o$.
c) + $Kr^+$, ■ $Ar^+$ primär, $E_o$ = 70 eV, $E_{k1}$ = 103 eV, $\theta = 5^o$.
(Die Pfeile zeigen jene Energien an, die man bei den angegebenen Q-Werten nach 2.4. erwarten sollte.)

Wie in Kap. 2.4. bereits erläutert, resultieren diese Ionen aus der "vorwärts- bzw. "rückwärts"-Streuung im Schwerpunktsystem. Hierbei ist zu beachten, daß der Strom der vorwärts-

gestreuten Ionen mit Energien um 0 eV nicht direkt mit dem der schnellen Ionen verglichen werden kann, da zu seinem Nachweis eine Extraktionsspannung an die Stoßzelle gelegt werden muß, deren Wert die Größe des Ionenstromes beeinflußt (Reaktionsvolumen und Winkelverteilung werden verändert).

Die Lage, Form und Breite des hochenergetischen Ionenpeaks ist stark von dem Massenverhältnis der beiden Stoßpartner abhängig. Im Falle des Systems $He^+$ + Kr wird trotz der hohen Stoßenergie im Schwerpunktssystem nur relativ wenig kinetische Energie auf die Produkt-Ionen übertragen. Dies wird zu großen Streuwinkeln hin noch ausgeprägter (s. Kap. 2.4.). Werden Ne und Ar als Quellengas verwendet, so verfügen die $Kr^+$-Ionen über größere kinetische Energien, die Spektren erscheinen stärker gedehnt und zeigen eine weiter ausgeprägte Struktur. Diese wird hervorgerufen durch die verschiedenen Reaktionskanäle der einzelnen Systeme, die zur Bildung von Produkt-Teilchen in elektronisch angeregten Zuständen führen. In Tabelle 4 sind die verschiedenen Reaktionsmöglichkeiten, die in den vorliegenden Systemen zur Erzeugung von $Kr^+$ dienen, aufgeführt. In den Spalten 1 und 2 werden die Zustände der Primär- und der Sekundär-Teilchen angegeben; Spalte 3 gibt einen Überblick über den Energiedefekt der Reaktion. Die Q-Werte wurden nach Literaturangaben in Ref. 61, 62 berechnet. Es zeigt sich, daß in sämtlichen Systemen ein exothermer Kanal existiert, in dem sich beide Teilchen nach dem Umladungsstoß im elektronischen Grundzustand befinden. Hier muß innere Energie in kinetische Translationsenergie übertragen werden. Neben diesem Reaktionsweg ist eine große Anzahl endothermer Reaktionskanäle möglich, zu deren Ablauf allerdings eine minimale kinetische Primärenergie notwendig ist, die nach dem Stoß als innere Energie gespeichert ist. Die minimalen Energiewerte werden in Spalte 4 der Tabelle 4 angegeben.

| $X^+$ | + Y | → $Y^+$ | + X | Q/eV | $E_K^S$/eV |
|---|---|---|---|---|---|
| $He^+(^2S)$ | $Kr(^1S)$ | $Kr^+(^2P)$ | $He(^1S)$ | 11,0/11,6 | |
| | | $Kr^{+*}(^2S)$ | $He(^1S)$ | -1,97 | 2,1 |
| | | $Kr^{++}$+e | $He(^1S)$ | -13,0 | 13,6 |
| | | $Kr^+(^2P)$ | $He^*(^3S)$ | -8,2 | 8,6 |
| | | $Kr^+(^2P)$ | $He^+$+e | -13,0 | 13,6 |
| | | $Kr^{+*}(^2S)$ | $He^*(^3S)$ | -21,7 | 22,7 |
| | | $Kr^{++}$+e | $He^+$+e | -37,5 | 39,3 |
| $Ne^+(^2P)$ | $Kr(^1S)$ | $Kr^+(^2P)$ | $Ne(^1S)$ | 6,9/7,5 | |
| | | $Kr^{+*}$ | $Ne(^1S)$ | -5,9 — -17,0 | 7,3 — 21,0 |
| | | $Kr^+(^2P)$ | $Ne^*$ | -9,0 — -14,0 | 11,1 — 17,3 |
| | | $Kr^{+*}$ | $Ne^*$ | -22,6 — -38,6 | 28,0 — 47,8 |
| $Ar^+(^2P)$ | $Kr(^1S)$ | $Kr^+(^2P)$ | $Ar(^1S)$ | 1,1/1,76 | |
| | | $Kr^{+*}$ | $Ar(^1S)$ | -11,7 — -22,8 | 17,3 — 33,7 |
| | | $Kr^+(^2P)$ | $Ar^*$ | -9,8 — -14,0 | 14,5 — 20,6 |
| | | $Kr^{+*}$ | $Ar^*$ | -23 — -39 | 34,4 — 56,9 |

Tabelle 4: *Verschiedene Reaktionskanäle, die in den Systemen $He^+$, $Ne^+$, $Ar^+$ + Kr zur Bildung von $Kr^+$-Ionen führen. Aufgeführt sind die Zustände der Primär- und Sekundärteilchen (Spalte 1 und 2) sowie der Energiedefekt (Spalte 3) und die energetische Schwelle der Reaktionen (Spalte 4).*

Die in Fig. 31 a, b, c eingezeichneten Pfeile entsprechen verschiedenen Q-Werten; sie geben jene Energien $E_{k3}$ an, die man nach der in Kap. 2.4. durchgeführten Rechnung für die exo- und endothermen Prozesse erwartet. Die Messung zeigt, daß in allen drei Systemen die endothermen Reaktionskanäle überwiegen; die Wahrscheinlichkeit für Ladungsaustausch ohne elektronische Anregung der Stoßpartner ist geringer. Dies scheint um so mehr zu gelten, wenn man von leichten Primärteilchen $He^+$ zum schweren $Ar^+$-Ion übergeht. Als wahrscheinlichste endotherme Reaktion erweisen sich in den drei vorliegenden Fällen jene, welche zur Bildung von $Kr^+$-Ionen in den ersten angeregten Zuständen führen (angezeigt in Fig. 31 durch Pfeile mit Q-Werten von -1,9; -6 und -11,75 eV). Dies sind folgende Prozesse (im System $Ar^+ + Kr$):

$$Ar^+(3p^5\ ^2P) + Kr(4s^24p^6\ ^1S) \rightarrow Kr^+(4s4p^6\ ^2S) + Ar(^1S) \quad (48)$$
$$\rightarrow Kr^+(4s^24p^45s\ ^4P) + Ar(^1S)$$

Mit abnehmender Wahrscheinlichkeit werden auch höher angeregte Ionen gebildet bis hin zur zweiten Ionisationsgrenze.

Dieses Ergebnis ist, wenn man das adiabatische Kriterium zugrunde legt, zunächst sehr überraschend, da Reaktionen mit kleinerem Q-Wert auch über einen größeren Wirkungsquerschnitt bei kleinen Energien verfügen sollten. Im System $Ar^+ + Kr$ sollte demnach der exotherme Kanal mit Q = +1,76 eV wesentlich stärker hervortreten als die endothermen Prozesse (Q < -11,7 eV). Auch müßte der exotherme Kanal beim Übergang vom System $Ar^+ + Kr$ zu $He^+ + Kr$ an Bedeutung verlieren. Beides wird experimentell nicht gefunden. Dadurch wird klar, daß die oben definierte Größe Q keinen entscheidenden Einfluß auf den Reaktionsablauf in diesen Systemen haben kann. Innerhalb der endothermen Reaktionskanäle unterscheidet sich jener, der zur Bildung von $Kr^+$-Ionen im $4s4p^6\ ^2S_o$-Zustand führt, von den übrigen dadurch, daß hier nur ein 4s-Elektron entfernt und in den Grundzustand des primären Atoms einge-

baut wird. In allen übrigen Reaktionen wird neben dem transferierten 4p-Elektron ein weiteres 4p-Elektron des $Kr^+$-Ions angeregt. Es handelt sich hier um einen Zwei-Elektronenprozeß. Aus dieser Sicht wäre verständlich, daß der Reaktionskanal (Gl. (48)) dominiert, da allgemein die Wahrscheinlichkeit für Ein-Elektronenprozesse größer ist, wenn die benötigte potentielle Energie für die zu vergleichenden Prozesse ungefähr gleich groß ist.

Die gefundenen Energieverteilungen der Produkt-Ionen entsprechen insofern Messungen von Champion und Doverspike (Ref. 13), als auch dort am System ($He^+$ + Ar) bei Stoßenergien um 100 eV nur endotherme Reaktionen gefunden wurden. Allerdings wurden in den Energieverteilungen der Produkt-Ionen keine Strukturen aufgelöst, so daß eine Analyse bezüglich der einzelnen endothermen Kanäle nicht durchgeführt werden konnte.

Im System ($He^+$ + Kr) können die gewonnenen Energieverteilungen mit den Resultaten optischer Messungen im sichtbaren und im UV-Bereich von Jaecks, de Heer und Salop (Ref. 63) sowie von Lipeless et al. (Ref. 16) verglichen werden. Die Autoren geben Emissionswirkungsquerschnitte einzelner Kr II-Linien nach dem Stoß mit 2keV-$He^+$-Ionen an. Es zeigt sich, daß die Emissionslinie bei einer Wellenlänge von 965 Å, die einem Übergang $4s4p^6\ ^2S_{1/2} \rightarrow 4s^24p^5\ ^2P_{1/2}$ entspricht, mit einem Emissionswirkungsquerschnitt von $5 \cdot 10^{-17}$ $cm^2$ den größten Beitrag zur Lichtausbeute liefert. Außerdem ist der Übergang von $^2S_{1/2} \rightarrow {}^2P_{3/2}$ mit einem Wert von $3{,}9 \cdot 10^{-17}$ $cm^2$ stark vertreten. Die übrigen Linien tragen wesentlich weniger zur Emission bei ($\sigma \leq 10^{-17}$ $cm^2$). Dabei wird die Verfälschung durch Kaskadeneffekte, die zur Bevölkerung des $^2S$-Niveaus von höheren Zuständen aus beitragen können, als sehr gering angesehen. Die optischen Messungen weisen somit ebenfalls auf eine hohe Besetzung des $^2S$-Niveaus

vom $Kr^+$Ion nach dem Stoß mit $He^+$-Ionen hin. Bei dem Vergleich ist jedoch zu beachten, daß das emittierte Licht über den Zustand des zweiten Teilchens nach dem Stoß nichts aussagt und zum anderen die Übergangswahrscheinlichkeit der einzelnen Linie mitberücksichtigt werden muß.

In den beiden Spektren ($Ne^+$, $Ar^+$ + Kr) können entsprechende Vergleiche mit optischen Messungen von Schlumbohm (Ref. 15) und Herbst (Ref. 17) nicht sinnvoll durchgeführt werden, da nur breitere Spektralbereiche im optischen Wellenlängengebiet untersucht wurden.

Solche Umladungsprozesse, die zur Bildung von $Kr^+$-Ionen im Grundzustand, sowie einem angeregten neutralisierten Projektil führen, können ebenfalls zur gefundenen Struktur beitragen. Da jedoch die optischen Messungen im wesentlichen Ionenlinien des Targets aufweisen (Ref. 17), wird ihr Einfluß als geringer angesehen. Auch solche Prozesse, die zu zwei angeregten Produktteilchen führen, sind denkbar, sie spielen jedoch erst bei höheren Energien eine wichtige Rolle (s. Kap. 6.2.). Aus den Energiespektren kann weiterhin entnommen werden, daß kein Einfluß von Metastabilen im Primärstrahl auf den Umladungsprozeß vorhanden ist. In diesem Falle müßten die Verteilungen zur hochenergetischen Seite hin weiter verbreitert sein.

Die Energieverteilung der langsamen Produkt-Ionen ist gegenüber dem Primärstrahl nur wenig verbreitert und zeigt keine Strukturen. Dies ist nach der Stoßbetrachtung verständlich, da sämtliche vorwärts gestreute Ionen unabhängig von $\theta$ über Energien um O eV verfügen. Um in dieser Ionengruppe eine Analyse hinsichtlich der Reaktionskanäle zu ermöglichen, müßte die Energieauflösung der Apparatur wesentlich gesteigert werden. Dies ist zur Zeit ohne drastische Abnahme der Sekundärströme nicht möglich. Die geringe Asymmetrie der Energieverteilung zu negativen Energiewerten hin wird durch das notwendige Extraktionspotential hervorgerufen.

## 6.2. Abhängigkeit der Energiespektren von der Stoßenergie $E_{kl}$ und dem Nachweiswinkel $\theta$

Wie schon im vorangehenden Kapitel erwähnt wurde, hängen die Energiespektren der Produkt-Ionen und damit die Reaktionswahrscheinlichkeit der einzelnen Kanäle von der Einschußenergie der primären Ionen ab. In Fig. 32 ist diese Abhängigkeit für das System $Ar^+ + Kr$ bei $\theta = 15^o$ dargestellt. Unten sind die Werte der einzelnen Reaktionen angezeigt. Es zeigt sich, daß die endothermen Reaktionen mit zunehmender Stoß-

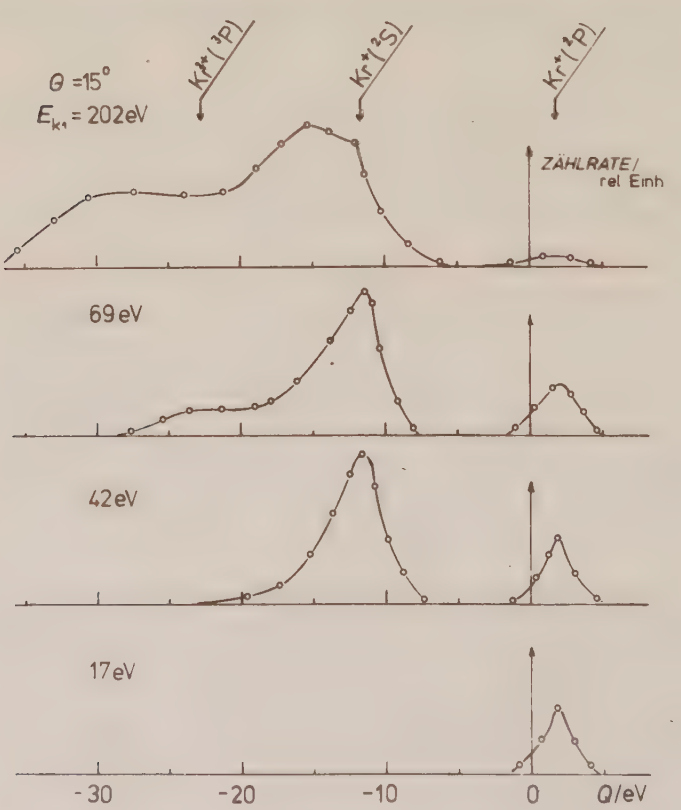



Fig. 32: *Darstellung der $Kr^+$-Zählraten über dem Energiedefekt Q im System $(Ar^+ + Kr)$ bei $\theta = 15^o$ und verschiedenen Stoßenergien.*

energie an Bedeutung gewinnen, bis im Falle von $E_{kl}$ = 202 eV die höher angeregten Kanäle überwiegen. Verringert man die Stoßenergie, so schließen zunächst die Kanäle mit den höchsten Q-Werten, bis schließlich bei Energien unter 20 eV nur noch der exotherme Kanal, der keine Schwelle besitzt, übrigbleibt. Im System $Ar^+$ + Kr spielen demnach bei Energien oberhalb ≈ 200 eV auch solche Kanäle eine Rolle, die zur Bildung zweier angeregter Produktteilchen führen (Q < -22,8 eV).

Entsprechend sind die Verhältnisse im System $Ne^+$ + Kr, s. Fig. 33. Hier sind die Energieverteilungen für $\theta = 0^o$ und $E_l$ = 245 bzw. 101 eV dargestellt. Deutlich wird hier die wachsende Bedeutung der Reaktionskanäle mit Q-Werten in den Bereichen -14 = Q = -10 eV und -40 = Q = -20 eV bei der Vergrößerung der Primärenergie. Beide Ionengruppen entsprechen folgenden Reaktionen:

$$\begin{aligned} Ne^+ + Kr &\rightarrow Kr^+ + Ne^* \qquad Q = -9 \leftrightarrow -14 \text{ eV} \\ &\quad\; Kr^{+*} + Ne^* \qquad Q = -22 \leftrightarrow -38 \text{ eV} \end{aligned} \tag{49}$$

Dieses Verhalten ist in Übereinstimmung mit Messungen von Siegel, Chen und Boering (Ref. 64) an den Systemen $He^{++}$ + He, Ne, Ar. Auch dort wurde eine Zunahme der endothermen Kanäle mit wachsender Energie festgestellt.

Im folgenden soll auf die Energieverteilung der schnellen Produkt-Ionen bei verschiedenen Nachweiswinkeln θ eingegangen werden. Wie bereits erwähnt, verfügen die Produkt-Ionen im System $He^+$ + Kr über geringe Energien, wodurch eine zuverlässige Bestimmung der Winkelabhängigkeit - speziell bei kleinen Stoßenergien und Winkeln > $30^o$ - erschwert wird. Die Untersuchungen werden deshalb hauptsächlich mit den Quellengasen Ne und Ar durchgeführt. Zunächst wurde die Druckabhängigkeit der einzelnen Reaktionen bestimmt, um anschließend eine Korrektur der Zählrate vor-

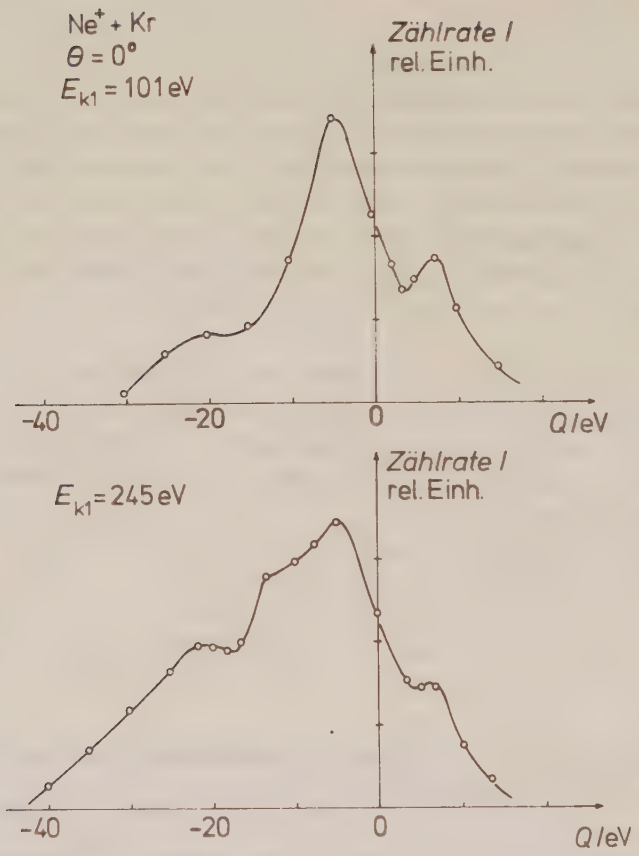



Fig. 33: *$Kr^+$-Spektrum im System $Ne^+ + Kr$ bei $\theta = 0^o$ und $E_{kl} = 101$ eV bzw. 245 eV.*

nehmen zu können. Sämtliche untersuchten Reaktionen zeigten eine lineare Druckabhängigkeit, wenn der Stoßzellendruck unter einem Wert von $1{,}5 \cdot 10^{-3}$ Torr gehalten wurde. Bei höheren Drucken traten Abweichungen von der Linearität infolge von Mehrfachstößen auf. Fig. 34 zeigt die Energieverteilung der $Kr^+$-Ionen, die beim Stoß von $Ar^+$-Ionen mit Kr im Winkelbereich zwischen $2^o$ und $12^o$ und bei $E_{kl} = 60$ eV gebildet werden. Die Zählraten wurden bezüglich des Reaktionsvolumens sowie des Targetdruckes ent-

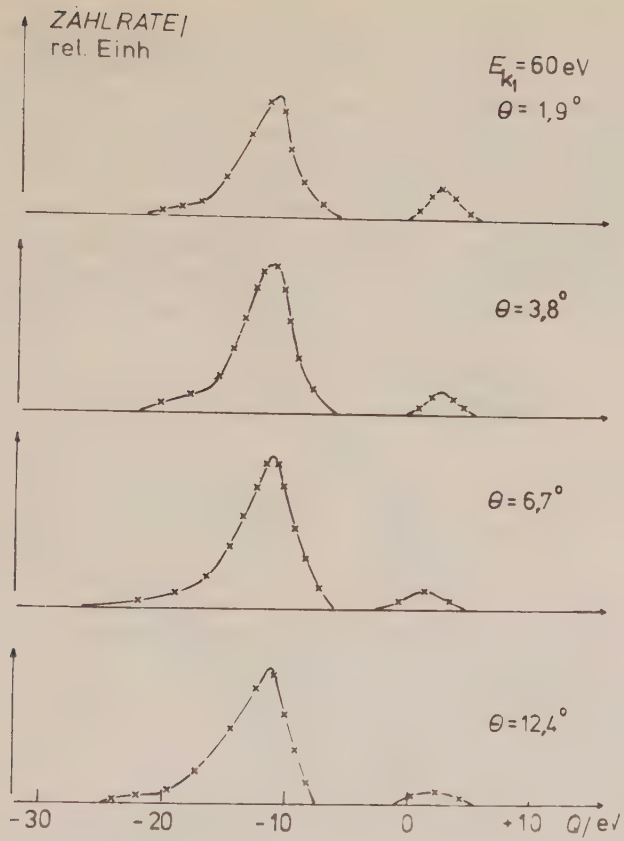



Fig. 34: *Energiespektrum der $Kr^+$-Ionen im System $(Ar^+ + Kr)$ bei Laborwinkeln zwischen 1,9° und 12,4° und einer Stoßenergie von $E_{k1}$ = 60 eV.*

sprechend den Kurven in Fig. 15 und 16 korrigiert. Es zeigt sich, daß der exotherme Reaktionskanal (Q = +1,76 eV) mit größer werdendem Streuwinkel θ abnimmt; der wahrscheinlichste Prozeß (Gl. (48)) mit Q = -11,7 eV hingegen bleibt nahezu unverändert, so daß dessen relativer Anteil zum differentiellen Wirkungsquerschnitt im vorliegenden Winkelbereich mit steigendem θ wächst. Dieses Verhalten ist allerdings abhängig von dem System, der Primärenergie sowie dem Winkelbereich. Schon die Betrachtung der Newtondiagramme in

Kap. 2.4. zeigte, daß für endotherme Ladungsaustauschprozesse Grenzwinkel existieren, die aus Energie- und Impulssatz resultieren. Die Lage dieser Winkel ist abhängig von dem Reaktionskanal und der Stoßenergie im Schwerpunktssystem. Nähert man sich diesen Grenzwinkeln, so sollte man erwarten, daß die Zählrate der entsprechenden $Kr^+$-Ionen abnimmt. In Fig. 35 bis 37 sind die Energiespektren über größere Winkelbereiche für beide Systeme und für verschiedene Stoßenergien dargestellt. Auf der dritten Koordinate

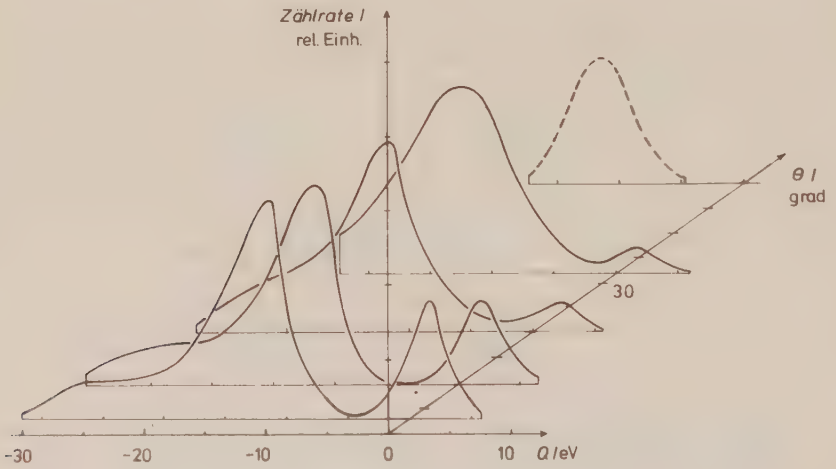



Fig. 35: *Energiespektren der $Kr^+$-Ionen im System ($Ar^+$ + Kr) in Abhängigkeit von θ. $E_{kl}$ = 75 eV.*

ist der Laborwinkel θ aufgetragen. Im System $Ar^+$ + Kr erhält man auch bei größeren Winkeln das gleiche Verhalten wie in Fig. 34, erst bei Winkeln um $45^\circ$ tritt eine Abnahme besonders der stärker endothermen Reaktionskanäle ein. Der berechnete Grenzwinkel liegt im angegebenen Fall bei ≈ $59^\circ$ für Q = -11,75 eV. Man muß jedoch beachten, daß der Absolutwert der Energieverteilung bei θ = $50^\circ$ (gestrichelt gezeichnet) eine größere Unsicherheit besitzt als die übrigen Kurven, da die Ionenenergie bereits < 10 eV ist. Die Abnahme zum Grenzwinkel hin kann zum Teil durch die Energiediskriminierung der bereits langsamen Ionen mit beeinflußt werden.

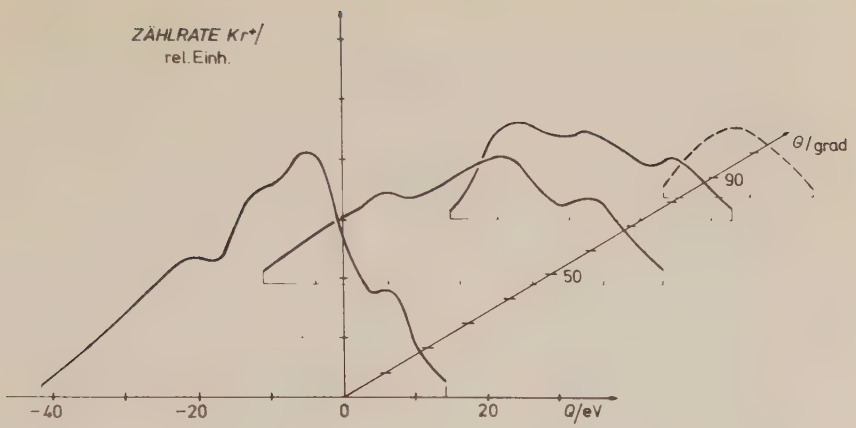



Fig. 36: *Energiespektren der $Kr^+$-Ionen im System ($Ne^+$ + Kr) in Abhängigkeit von θ. $E_{kl}$ = 245 eV.*

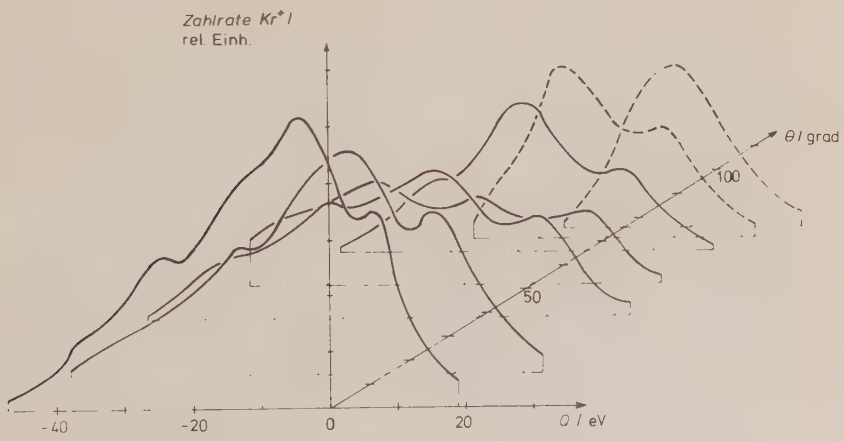



Fig. 37: *Energiespektren der $Kr^+$-Ionen im System ($Ne^+$ + Kr) in Abhängigkeit von θ. $E_{kl}$ = 397 eV.*

Fig. 36 und 37 zeigen die Verhältnisse im System ($Ne^+$ + Kr) bei etwas höheren Stoßenergien. Der exotherme Kanal nimmt bei beiden Energien nur wenig mit steigendem Winkel θ ab,

stärker dagegen fällt der endotherme Kanal mit Q = -5,95 eV. So erlangen bei $\theta \approx 50^{\circ}$ bzw. $70^{\circ}$ jene Reaktionen eine große Bedeutung, welche zwei angeregte Produktteilchen zurücklassen. Wird der Winkel weiter erhöht, so schließen zunächst jene Kanäle mit den höchsten Q-Werten, sie erreichen zuerst ihren Grenzwinkel. Für Winkel oberhalb $70^{\circ}$ bzw. $80^{\circ}$ bleibt nur noch der exotherme Reaktionsweg übrig. Das Anteigen der Zählraten oberhalb $\theta = 70^{\circ}$ bei der Energie $E_{k1} = 397$ eV ist nicht ganz gesichert, da in diesem Bereich die kinetische Energie der Produkt-Ionen bereits relativ gering ist ($E_{k3} \sim 10 - 20$ eV) und eine hohe Nachbeschleunigung mit dem Gitter erfolgen muß. Beim Vergleich der einzelnen Spektren ist weiter zu berücksichtigen, daß die Auflösung bezüglich der Größe Q vom Winkel abhängig; bei der Messung wurde die Größe $E_k/\Delta E$ (Energieauflösung) konstant gehalten.

Zusammenfassend läßt sich für diesen Abschnitt sagen, daß in den beiden Systemen ($Ne^+ + Kr$) und ($Ar^+ + Kr$) die Bildung von schnellen $Kr^+$-Ionen durch Umladung im wesentlichen durch endotherme Reaktionskanäle bestimmt wird; dies gilt für weite Bereiche der Parameter $E_{k1}$ und $\theta$. Lediglich bei Primärenergien, die unterhalb der energetischen Reaktionsschwellen liegen, sowie bei Nachweiswinkeln oberhalb der in Kap. 2.4. angegebenen Grenzwinkel der einzelnen Prozesse, dominiert der exotherme Kanal. Mit steigendem Nachweiswinkel und mit steigender Primärenergie wächst die Bedeutung der stärker endothermen Reaktionswege.

## 6.3. Differentielle Wirkungsquerschnitte

Zur Bestimmung der differentiellen Wirkungsquerschnitte für die im vorigen Kapitel beschriebenen Prozesse, wurden die aufgenommenen Energieverteilungen (Zählrate als Funktion der kinetischen Energie der Produkt-Ionen) integriert und hinsichtlich des Targetgasdruckes und des Reaktionsvolumens korrigiert. Um absolute Werte für den differentiellen Wir-

kungsquerschnitt zu erhalten, wurden Vergleichsmessungen mit Reaktionen durchgeführt, deren Wirkungsquerschnittsverlauf in der Literatur bekannt ist. Herangezogen wurden hierzu differentielle Messungen der elastischen Streuung in den Systemen $He^+ + Ne$ und $Ar^+ + Ar$, die von Aberth und Lorents (Ref. 54) durchgeführt wurden. Ein Vergleich wurde bei verschiedenen Winkeln und Energien vorgenommen.

Schwierigkeiten treten bei der Kalibrierung durch die unterschiedlichen Ionenarten ($He^+$, $Ar^+$, $Kr^+$) auf, deren Nachweiswahrscheinlichkeit in der vorliegenden Apparatur nicht gleich groß ist. Der wesentliche Grund hierfür liegt in der unterschiedlichen Transmission der Ionen im Massenfilter, sowie der unterschiedlichen Sekundärelektronenausbeute an der Kathode des Teilchenmultipliers. Die Transmission im Massenfilter nimmt mit steigender Masse ab (Ref. 65), die Nachweiswahrscheinlichkeit im Multiplier dagegen leicht zu (Ref. 66). Um die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit für die 3 Ionenarten zu bestimmen, wurden in Stromstärke und Geometrie gleiche Primärstrahlen der drei Ionenarten erzeugt und die Zählraten unter einem Winkel von $0^o$ bestimmt. Die Geometrie der Primärstrahlen konnte überprüft werden durch die Ionenströme auf den einzelnen Blenden sowie auf der Winkelanalyseneinheit und durch die Stromänderungen bei der Rotation der Nachweiseinheit. Für die Nachweisempfindlichkeit NE ergaben sich folgende Verhältnisse:

$$NE(He^+):Ne(Ar^+):NE(Kr^+) = 4,0 : 1,8 : 1,0 . \quad (50)$$

Diese Werte streuen bei verschiedenen Primärenergien innerhalb eines Bereiches von ± 10 %.

In Fig. 38 werden die absoluten differentiellen Wirkungsquerschnitte für Umladung mit Impulsübertrag im System $Ne^+ + Kr$ wiedergegeben. Bei allen Energien zeigt sich, daß

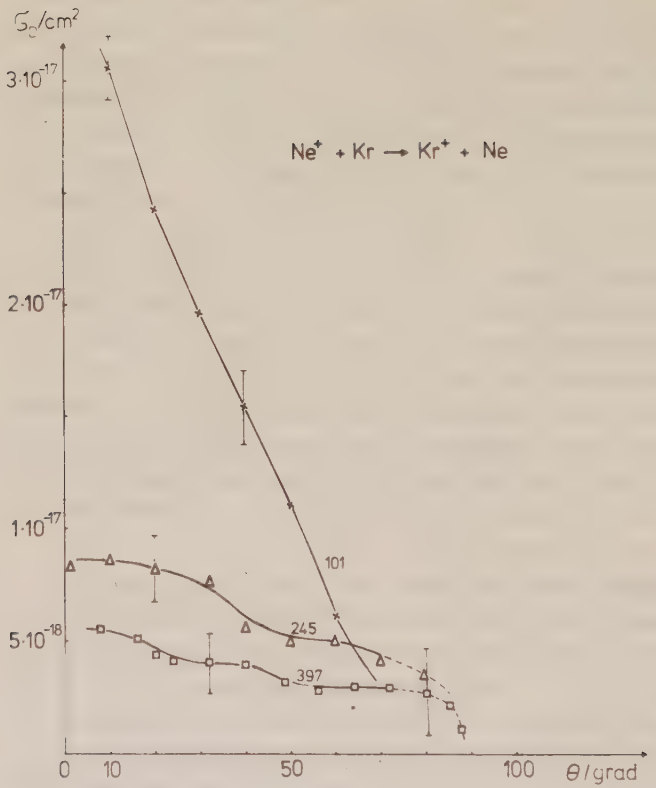



Fig. 38: *Differentieller Wirkungsquerschnitt für Umladung mit Impulsübertrag im System* $(Ne^+ + Kr)$. $E_{kl}$: -x- 101 eV; -△- 245 eV; -□- 397 eV.

der Wirkungsquerschnitt in Vorwärtsrichtung ein Maximum aufweist und zu größeren Winkeln hin mehr oder weniger steil abfällt. Beim Erreichen der Grenzwinkel zeigen die Kurven einen steileren Abfall, der wegen der möglichen Energiediskriminierung nur gestrichelt gezeichnet ist. Ähnlich liegen die Verhältnisse im System $Ar^+ + Kr$; dargestellt in Fig. 39. Hier konnte jedoch eine Trennung der endothermen Kanäle vorgenommen werden, so daß für beide Gruppen ein getrennter Wirkungsquerschnitt angegeben wird.

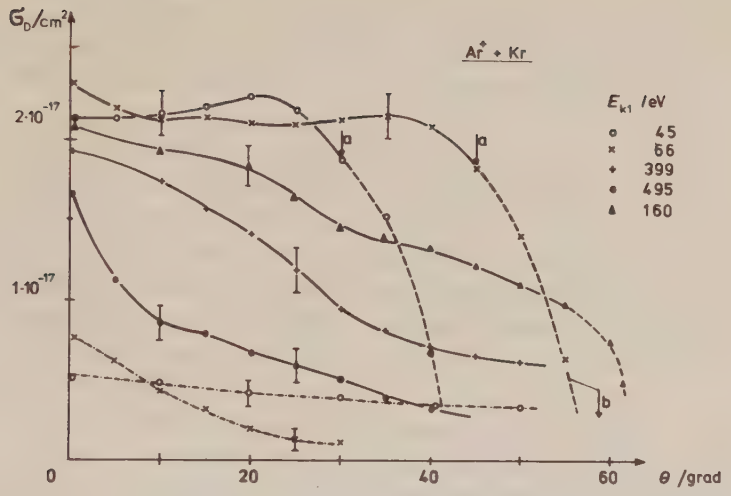



Fig. 39: *Differentieller Wirkungsquerschnitt für Umladung mit Impulsübertrag im System (Ar⁺ + Kr) bei verschiedenen Stoßenergien. Die durchgezogenen Kurven entsprechen den endothermen Kanälen; -.-.- exothermer Kanal mit Q = 1,76 eV.*

Auch hier ist die Vorwärtsrichtung im Laborsystem bevorzugt; lediglich bei kleinen Energien verläuft der Wirkungsquerschnitt für die endothermen Kanäle ungefähr konstant bis hin zu den Grenzwinkeln, die durch die Pfeile a (Q = -22,4 eV) und b (Q = -11,7 eV) angezeigt werden. Der exotherme Kanal zeigt einen langsam abfallenden Wirkungsquerschnitt mit wachsendem Laborwinkel θ.

Die eingezeichneten Fehlergrenzen entsprechen dem statistischen Fehler. Messungen verschiedener Meßreihen ergaben innerhalb dieser Genauigkeit reproduzierbare Ergebnisse. Der absolute Fehler wird durch die Genauigkeit der Kalibrierung mitbestimmt. Von Aberth und Lorents wird für die Messungen der elastischen Streuung, die hier zum Vergleich herangezogen wurden, ein möglicher systematischer Fehler von 6 bzw. 13 % infolge fehlerhafter Druckmessung angegeben.

Die gefundenen Wirkungsquerschnitte sind deshalb interessant, da sie zeigen, daß auch innerhalb der Umladungsprozesse, die im Schwerpunktsystem in "Rückwärtsrichtung" erfolgen, jene mit maximalem Impulsübertrag ($\theta = 0^{o}$) bevorzugt sind.

Um die Bedeutung dieser Umladungsgrößen mit großem Impulsübertrag zu erkennen, muß ein Vergleich mit den im Schwerpunktsystem "vorwärtsgestreuten" Ionen durchgeführt werden. Mit der vorliegenden Apparatur ist ein direkter Vergleich nicht möglich, jedoch kann ein Vergleich mit Wirkungsquerschnitten von Ref. 15 und 18 durchgeführt werden.

Zunächst werden durch Integration der differentiellen Wirkungsquerschnitte im gemessenen Winkelbereich totale Wirkungsquerschnitte für Umladung mit großem Impulsübertrag bestimmt

$$\sigma_M(\theta^*) = 2\pi \int_0^{\theta^*} \sin\theta \cdot \sigma_D(\theta) d\theta \quad . \qquad (51)$$

Die obere Integrationsgrenze $\theta^*$ ist durch den Kurvenverlauf in Fig. 38 und 39 gegeben. Die Werte $\sigma_M$ werden verglichen mit totalen Wirkungsquerschnitten für Umladungsprozesse ohne Impulsübertrag. Diese Wirkungsquerschnitte $\sigma_{TOT}$ wurden gemessen mit Apparaturen, deren Meßprinzip darin besteht, die langsamen Produkt-Ionen beim Ladungsaustausch durch kleine transversale elektrische Felder zu extrahieren und auf einer Elektrodenanordnung aufzusammeln. In Tabelle 5 sind die einzelnen Werte für die Systeme ($Ne^+ + Kr$) und ($Ar^+ + Kr$) aufgeführt. Die zum Vergleich herangezogenen totalen Wirkungsquerschnitte entsprechen Messungen von Schlumbohm (Ref. 15) und Schrey (Ref. 18). Lediglich beim System ($Ne^+ + Kr$) liegen weitere Vergleichswerte von Maiser II (Ref. 67) im Energiebereich unterhalb 80 eV vor. Mit einem Wert von $\approx 1 \cdot 10^{-17}$ cm$^2$ bei $E_{kl} = 55$ eV zeigt sich jedoch eine starke Diskrepanz zu Schlumbohms Werten, sie liegen außerdem weit niedriger als die in dieser Arbeit

| System | $E_{kl}$ | $\frac{\sigma_{TOT}}{10^{-16}cm^2}$ | $\frac{\sigma_M}{10^{-16}cm^2}$ | $\frac{\sigma_M}{\sigma_{TOT}+\sigma_M}$ | $\frac{\sigma_{OPT}}{10^{-16}cm^2}$ |
|---|---|---|---|---|---|
| $Ne^+$+Kr | 101 | 7,5 | 0,53 | 6,6 % | |
| | 200 | 7,5 | 0,35 | 4,5 % | 1,35 |
| | 245 | 7,5 | 0,29 | 3,7 % | |
| | 397 | 7,5 | 0,19 | 2,5 % | |
| $Ar^+$+Kr | 45 | 1,7 | 0,28 | 14,0 % | |
| | 66 | 1,5 | 0,51 | 25,4 % | |
| | 160 | 1,1 | 0,43 | 28,1 % | |
| | 200 | 1,0 | 0,39 | 28,1 % | 0,19 |
| | 399 | 0,9 | 0,25 | 21,7 % | |
| | 495 | 0,8 | 0,1 | 11,1 % | |

Tabelle 5: *Vergleich von totalen Wirkungsquerschnitten für Umladung nach Ref. 15, 18 mit dem Wirkungsquerschnitt $\sigma_M$ für Umladung mit Impulsübertrag in den Systemen ($Ne^+$ + Kr) und ($Ar^+$ + Kr). In der letzten Spalte sind optische Wirkungsquerschnitte für den Wellenlängenbereich zwischen 3500 - 5600 Å bei $E_{kl}$ = 200 eV angegeben (Ref. 17).*

bestimmten Werte von $\sigma_M$. Diese großen Unterschiede können auf das von Ref. 67 verwendete Meßverfahren zurückgeführt werden, so daß hier auf eine weitere Verwendung der Werte verzichtet wurde.

Ein Vergleich von $\sigma_{TOT}$ und $\sigma_M$ zeigt, daß in der Tat ein nennenswerter Anteil der Umladungsstöße im vorliegenden Energiebereich mit Impulsübertrag erfolgt. Im System ($Ne^+$ + Kr) liegt der Anteil zwischen ≈ 7 und ≈ 2 %, im System $Ar^+$ + Kr ist der Prozentsatz höher, er variiert zwischen 30 und 10 %. Mit steigender Energie nimmt die Wahrscheinlichkeit für Ladungsaustausch mit Impulsübertrag ab.

Ein Vergleich mit "optischen" Wirkungsquerschnitten aus Ref. 17 zeigt weiterhin, daß im System ($Ne^+$ + Kr) ein großer Prozentsatz der "vorwärtsgestreuten" Ionen ebenfalls über endotherme Kräfte gebildet wird (der Anteil

ist > 13 %), wobei die Lichtemission im UV-Bereich noch nicht berücksichtigt ist. Im System $Ar^+$ + Kr ist der gemessene Wert von $\sigma_M$ bei einer Stoßenergie von 200 eV größer als der optische Wirkungsquerschnitt, was an der Vernachlässigung des UV-Anteiles bei der optischen Messung liegt. Nimmt man für beide Größen ungefähr den gleichen Wert an, was gerechtfertigt erscheint, so bedeutet das, daß im vorliegenden System die vorwärtsgestreuten Produkt-Ionen im wesentlichen über den exothermen Reaktionskanal gebildet werden. Bei kleineren Stoßparametern, wo eine intensive Wechselwirkung vorliegt, ist die Bildung angeregter Produktteilchen wahrscheinlich, beim tangentialen Stoß wird ein äußeres 4p-Elektron ausgetauscht und in den Grundzustand des neutralisierten Projektils gebunden.

Diese Deutung klärt auch die Diskrepanz zwischen optischen Messungen und Bestimmungen von totalen Wirkungsquerschnitten, wie in der Einleitung erklärt. Da mit den letzteren Methoden nur die langsamen Sekundärionen aufgesammelt werden, können hier keine Hinweise auf die endothermen Kanäle im Schwellenbereich gefunden werden.

## 6.4. Transformation von $\sigma_D$ ins Schwerpunktsystem

Um die experimentellen Ergebnisse in einer allgemeinen Form darzustellen, ist es notwendig, sie in das Schwerpunktssystem zu transformieren. Dies ist vernünftig, da die Wechselwirkungen nur von den Relativkoordinaten abhängen und die Schwerpunktsgeschwindigkeit beim Stoß erhalten bleibt. Sind die Geschwindigkeitsvektoren sowie die inneren Zustände der beiden Teilchen vor und nach dem Stoß bekannt, so kann leicht eine Transformation der differentiellen Wirkungsquerschnitte vorgenommen werden (s. Ref. 68). Ausgehend von der Forderung, daß in die entsprechenden Raumwinkelelemente im Labor- und Schwerpunktsystem die

gleiche Anzahl von Teilchen gestreut wird, erhält man folgende Transformationsbeziehung:

$$\sigma_D \sin\theta \, d\theta = \sigma_{D,o} \sin\chi \, d\chi$$

$$\sigma_{Do} = \frac{|\gamma_3 \cos\chi - 1|}{(1+\gamma_3^2 - 2\gamma_3 \cos\chi)^{3/2}} \quad \sigma_D = F \cdot \sigma_D \, . \tag{52}$$

Die Transformationsfunktion F hängt ab von $\gamma_3$ sowie dem Schwerpunktswinkel $\chi$ und damit auch von $\theta$. In Fig. 40 ist der Verlauf der Funktion F für das System $Ar^+ + Kr$ für verschiedene Parameter dargestellt. Es zeigt sich, daß

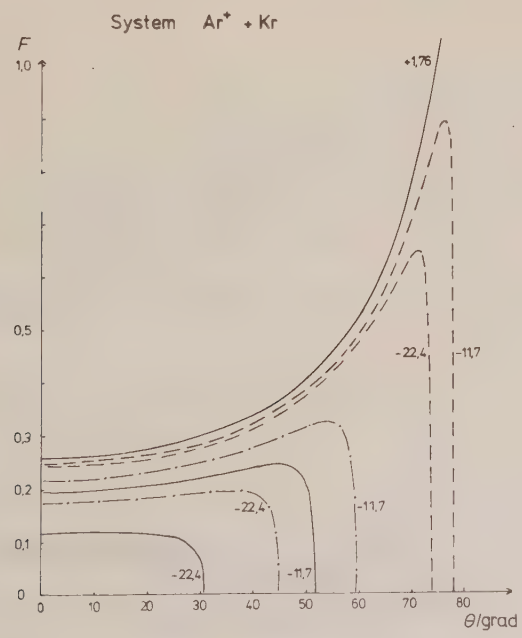



Fig. 40: *Verlauf der Transformationsfunktion F in Abhängigkeit von θ. Die Berechnung wurde für "rückwärtsgestreute" Ionen im System $Ar^+ + Kr$ durchgeführt. Der Energiedefekt Q wird als Parameter an den einzelnen Kurven angegeben. $E_{kl}$: —— 45 eV; —·— 66 eV; --- 399 eV.*

lediglich bei großen Stoßenergien der Einfluß der Größe Q über einen weiten Winkelbereich gering ist, so daß nur hier eine Transformation in dieser Weise möglich ist. Der differentielle Wirkungsquerschnitt für den separierten exothermen Prozess kann auch für kleine Stoßenergien transformiert werden. Die Ergebnisse werden in Fig. 41 und 42 wiedergeben: Im System $Ar^+$ + Kr zeigt der differentielle

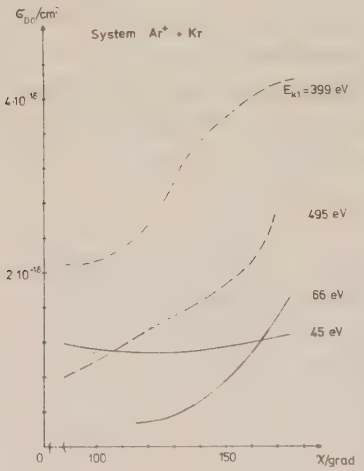



Fig. 41:
*Differentieller Wirkungsquerschnitt für die Umladung mit Impulsübertrag im System ($Ar^+$ + Kr) im Schwerpunktssystem. --- endotherme Reaktionskanäle, —— exothermer Reaktionskanal.*

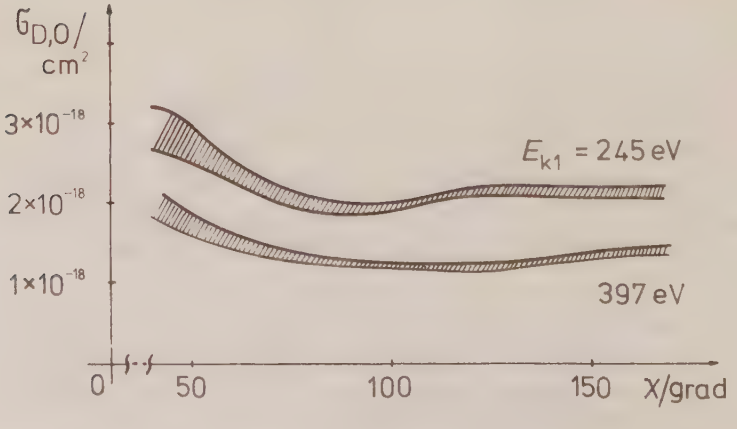



Fig. 42: *Differentieller Wirkungsquerschnitt für die Umladung mit Impulsübertrag im System ($Ne^+$ + Kr) im Schwerpunktssystem. Die obere und untere Grenze der schraffierten Bereiche entsprechen Q-Werten von*

Wirkungsquerschnitt einen Anstieg für Schwerpunktswinkel von $180^{o}$, d. h. in einem zentralen Stoß wird den ionisierten Targetatomen viel Energie übertragen. Der Verlauf zu kleinen Schwerpunktswinkeln hin wird durch die "vorwärtsgestreuten", langsamen Produkt-Ionen bestimmt, deren Winkelverteilung nicht gemessen werden konnte. Aus dem großen Anteil dieser Ionen-Gruppe kann man jedoch schließen, daß zu kleineren Winkeln $\chi$ hin ein erneuter Anstieg erfolgen wird, entsprechend der Bedeutung der tangentialen Stöße. Im System $Ne^{+}$ + Kr (Fig. 42) ist die Bevorzugung der Streuwinkel um $180^{o}$ nicht so gravierend wie beim ($Ar^{+}$ + Kr)-System, allerdings wird auch hier ein beachtlicher Anteil unter großen Streuwinkeln und damit mit einem großen Impuls gebildet.

Auf eine weitere Auswertung dieser differentiellen Daten mit Hilfe von reduzierten Variablen wurde verzichtet, da infolge der mangelnden Energieauflösung keine explizite Trennung der einzelnen endothermen Reaktionskanäle in größeren Energie- und Winkelbereichen möglich war.

## 6.5. Energieabhängigkeit der Bildung schneller $Kr^{+}$-Ionen

In den Energie- und Winkelbereichen, in welchen der Umladungsprozeß im wesentlichen über *einen* Reaktionskanal abläuft, kann man versuchen, die experimentellen Ergebnisse mit dem in Kap. 2.3. beschriebenen Modell der Kurvenkreuzungen zu beschreiben. Dies scheint gewährleistet im System $Ar^{+}$ + Kr, wenn man sich auf kleine Nachweiswinkel sowie niedrige Stoßenergien beschränkt. Hier spielt die Bildung von $Kr^{+}$ im $^{2}S$-Zustand die dominierende Rolle. Für zentrale Stöße, d. h. Stoßparameter $\rho = 0$ und damit $\theta = 0$, wurde das Verhalten der endothermen Kanäle im Schwellenbereich untersucht (s. Fig. 43). Es zeigt sich, daß bei der Schwellenenergie für die Anregung des $^{2}S$-Zustandes ein steiler Anstieg der Zählrate erfolgt, alle höher endothermen Reak-

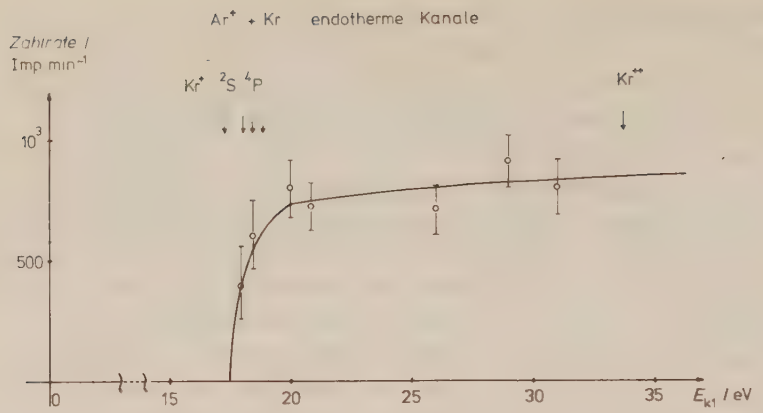



Fig. 43: *Zählrate der im System ($Ar^+ + Kr$) über endotherme Kanäle gebildeten $Kr^+$-Ionen in Abhängigkeit von der Stoßenergie im Schwellenbereich ($\theta = 0^o$).*

tionen zeigen kein entsprechend ausgeprägtes Verhalten. Der Einfluß der Kanäle, die zur Bildung von $Kr^+$ im $^4P$-Zustand führen, kann aus Fig. 43 nicht abgeschätzt werden. Da es sich jedoch um einen Zwei-Elektronenprozeß handelt, wird eine geringere Bedeutung angenommen. In Fig. 44 ist der relative Kurvenverlauf an die absoluten differentiellen Wirkungsquerschnitte für $\theta = 0^o$ aus Fig. 39 angepaßt worden. Es ergibt sich ein Maximum im Wirkungsquerschnittsverlauf bei einer Stoßenergie $E_{kl}$ von ≈ 70 eV. Beschreibt man diesen Tatbestand im Modell der sich kreuzenden Potentialkurven, so muß man zunächst Aussagen über die energetische Lage dieser "Kurvenkreuzung" machen. Aus dem Schwellenverhalten in Fig. 43 ergibt sich, daß der Kreuzungspunkt nicht wesentlich höher als der asymptotische Potentialkurvenverlauf liegen kann. Aus der Tatsache, daß im Experiment keine stabilen $ArKr^+$-Ionen gefunden wurden, kann man schließen, daß hier kein starkes Potentialminimum auftritt, d. h. der Kreuzungspunkt kann nicht viel tiefer als der obere

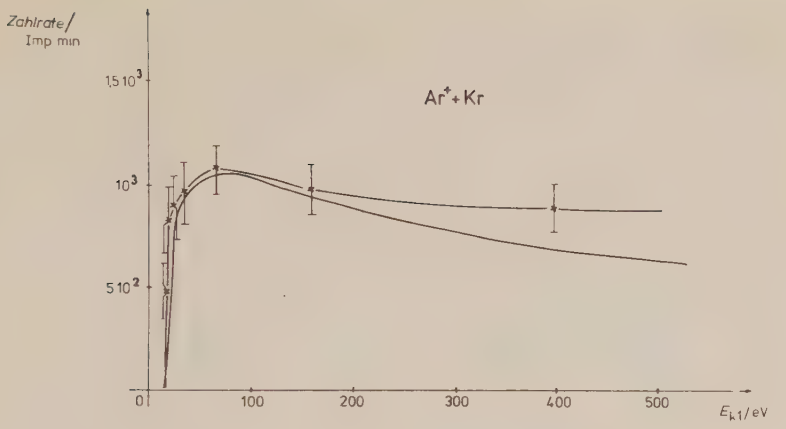



Fig. 44: Zählrate der im System ($Ar^+ + Kr$) unter $\theta = 0^o$ gebildeten energiereichen $Kr^+$-Ionen in Abhängigkeit von der Stoßenergie. -x- eigene Messung; —— berechneter Kurvenverlauf nach der Landau-Zener-Formel (Gl. (9)).

asymptotische Verlauf liegen. Daraus resultiert folgender schematischer Potentialverlauf:

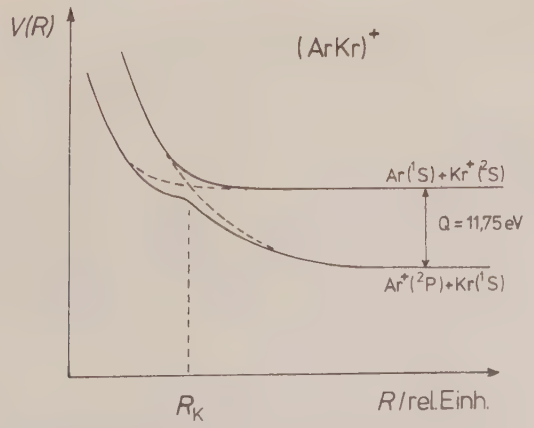



Fig. 45: Schematischer Potentialverlauf im System $ArKr^+$.

Hieraus folgt für zentrale Stöße, daß am Ort der Kurvenkreuzung ($R = R_k$) die Relativenergie gleich ist der Differenz zwischen primärer Stoßenergie $E_{kl}$ und der Schwellenenergie $E_k^s$. Den maximalen Wirkungsquerschnitt erhält man demnach bei einer Relativenergie am Kreuzungspunkt von ≈ 52 eV. In Fig. 44 ist eine theoretische Kurve entsprechend der Beziehung (9) eingezeichnet, welche im Maximum der experimentellen Kurve angepaßt wurde. Der Unterschied beider Kurven bei kleinen Energien kann auf die Vernachlässigung der endlichen Breite des Übergangsbereiches zurückgeführt werden; außerdem ist der statistische Fehler der experimentellen Kurve in der Schwellennähe relativ groß (s. Fig. 43). Daß bei höheren Energien die experimentelle Kurve über der theoretischen liegt, ist verständlich, da hier auch höher angeregte $Kr^+$-Ionen gebildet werden, die mit zur Messung gelangen. Insgesamt ergibt sich eine überraschende Übereinstimmung. Aus der Anpassung im Maximum erhält man für den Parameter $h_{nm}^2/\alpha$ den Wert: 0,01155 eV·Å. Verwendet man die von Bates angebene Näherung in der Umgebung der Kreuzung der Potentialkurven (s. Ref. 34)

$$h_{nn}(R) - h_{mm}(R) = \pm \frac{e^2}{R} + h_{nn}(\infty) - h_{mm}(\infty), \qquad (53)$$

so ergibt sich hieraus für das Produkt von Wechselwirkungsenergie und Kernabstand am Kreuzungspunkt: $h_{nm} \cdot R_k \approx 0{,}41$ eV·Å. Nimmt man weiter für die Lage des "Kreuzungspunktes" Werte zwischen 1 und 10 Å an, so sind beide Potentialkurven bei $R_k$ um 0,8 bis 0,08 eV getrennt. Aus der Tatsache, daß diese endotherme Reaktion für die Produktion langsamer Umladungsionen keine wesentliche Rolle spielt, kann man auf einen kleinen Wert von $R_k$ schließen.

Eine solche Anpassung ist nur für $\theta = 0^o$ möglich. Führt man eine Integration über die differentiellen Wirkungsquerschnitte durch, so erhält man das in Fig. 46 dargestellte

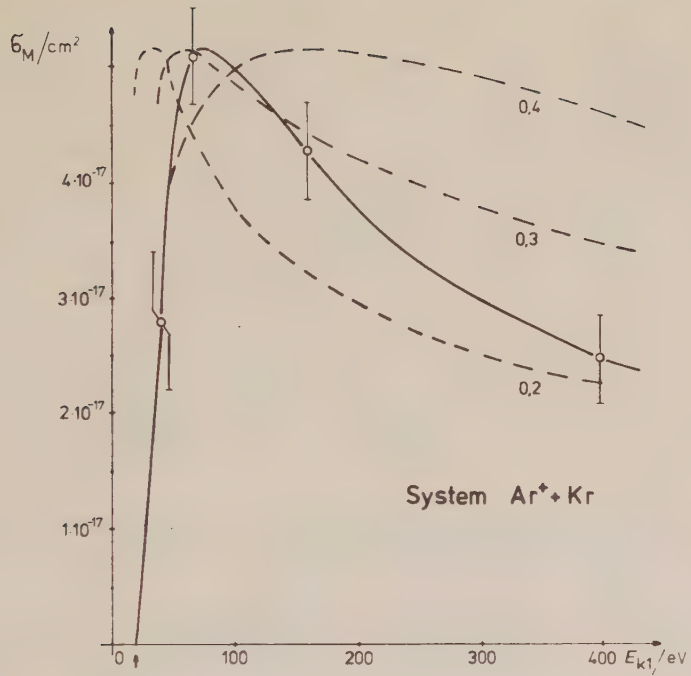



Fig. 46: *Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für Umladung mit Impulsübertrag im System* $(Ar^+ + Kr)$. *-o- eigene Messung; --- theoretische Kurven nach Gl. (20) mit Werten des Parameters* $h_{nm} \cdot R_k$ *von 0,2; 0,3 und 0,4 eV·Å.*

Ergebnis. Zum Vergleich sind theoretische Kurven entsprechend der Beziehung (20) für verschiedene Anpassungsparameter eingezeichnet. Da die experimentelle Kurve hier viele verschiedene Reaktionskanäle umfaßt, ist keine vernünftige Übereinstimmung mehr zu erzielen.

Im System $Ne^+ + Kr$ sind die Verhältnisse komplizierter, da in allen Energie- und Winkelbereichen stets mehrere Reaktionswege durchlaufen werden, und somit einzelne Reaktionen nicht separiert getestet werden können. Wie Fig. 47 zeigt, nimmt jedoch auch hier $\sigma_M$ mit steigender Energie ab; die Bedeutung der Stöße mit kleinen Stoßparametern wächst zu kleinen Energien hin.

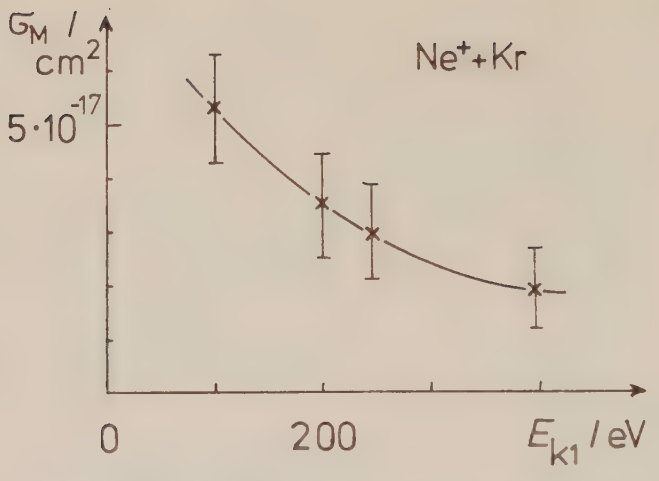



Fig. 47: *Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnittes für Umladung mit Impulsübertrag im System* ($Ne^+ + Kr$).

## 6.6. Energie- und Winkelverteilung zweifach geladener Kr-Ionen

Außer reinen Umladungsprozessen konnten bei höheren Stoßenergien ($E_{k1}$ > 100 eV) auch solche Reaktionen beobachtet werden, die neben dem Austausch eines Elektrons noch eine zusätzliche Ionisierung des Targetteilchens zur Folge hatten. Diese Prozesse sind alle endotherm mit Q-Werten < - 13 eV, ihr Auftreten ist zu verstehen als Fortsetzung der $Kr^+$-Energiespektren zu negativen Energiedefekten hin. Wie bei den $Kr^+$-Ionen besteht das Energiespektrum der zweifach geladenen Ionen aus einer nieder- und einer hochenergetischen Gruppe; die Verteilung der "rückwärtsgestreuten" Ionen ist in Fig. 48 für die verschiedenen Systeme dargestellt. Genaue kinematische Aussagen lassen sich nur gewinnen, wenn im Experiment durch Koinzidenzmessungen der Emissionswinkel und die kinetische Energie des ausgesandten Elektrons und des Produkt-Ions gleichzeitig bestimmt werden. Nimmt man an, daß Energie und Impuls des freigesetzten Elektrons klein sind, so kann man näherungsweise auch diesen Prozeß entsprechend Kap. 2.4. behandeln. Die kinetischen Energien, die man erwarten würde,

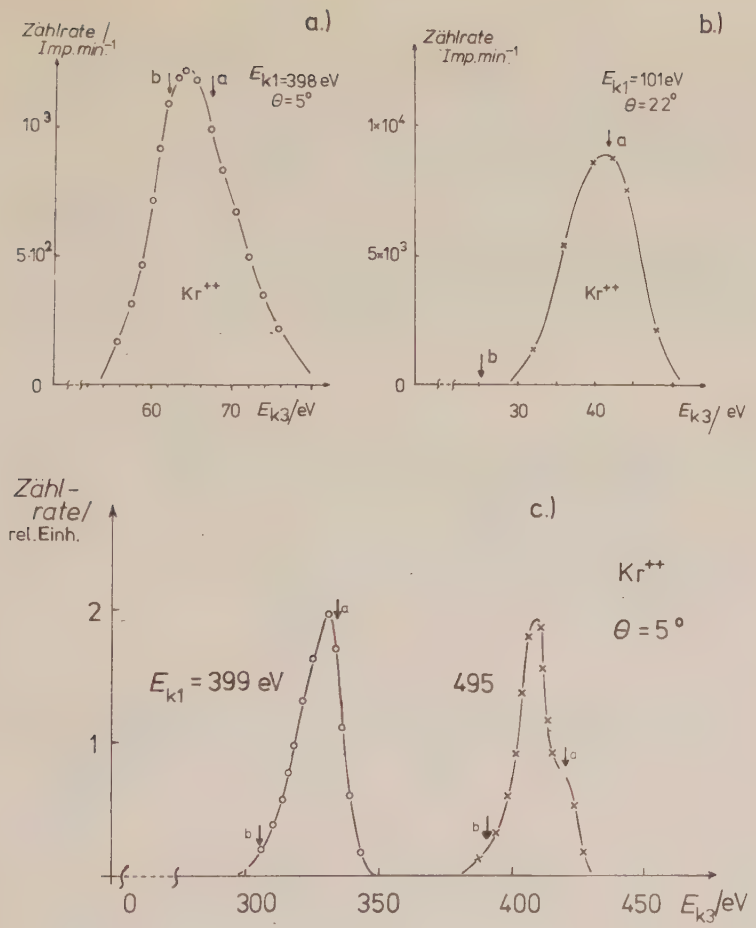
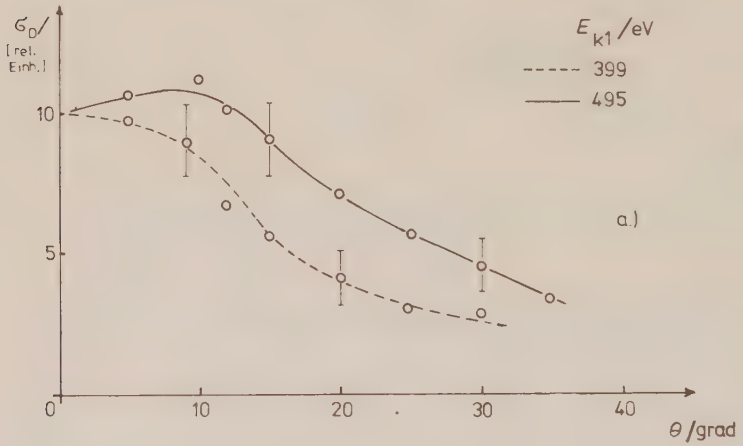



Fig. 48: *Energieverteilung der $Kr^{++}$-Ionen nach einer ionisierenden Umladung.*
*a) System: $He^+ + Kr$, $E_{k1}$ = 398 eV, θ = 5°)*
*b) System: $Ne^+ + Kr$, $E_{k1}$ = 101 eV, θ = 22°)*
*c) System: $Ar^+ + Kr$, $E_{k1}$ = 399 eV und 495 eV, θ = 5°.*

wenn sich das $Kr^{++}$-Ion im Grundzustand oder in einem der höchsten angeregten Zustände befindet, werden durch die Pfeile a bzw. b in Fig. 48 angezeigt. Es scheint so, daß auch die $Kr^{++}$-Ionen zum Teil in angeregten Zuständen ent-

stehen. Der Einfluß des emittierten Elektrons kann als gering angesehen werden, da bei verschiedenen Nachweiswinkeln die Spektren durch die Pfeile a und b richtig eingegrenzt werden. Die mangelnde Energieauflösung gestattet jedoch keine Trennung verschiedener Reaktionskanäle.

In den Systemen $Ne^+$ und $Ar^+$ + Kr wurden die Winkelverteilungen der $Kr^{++}$-Ionen bei verschiedenen Stoßenergien bestimmt; in Fig. 49 sind die relativen differentiellen



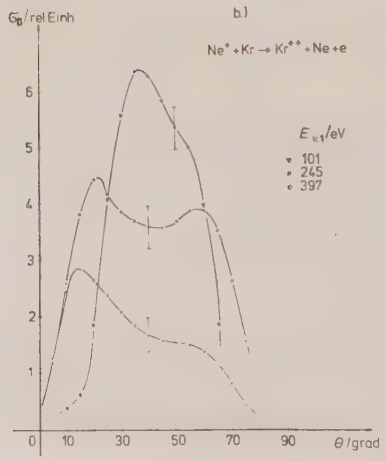




Fig. 49:

*Differentieller Wirkungsquerschnitt für die Bildung von $Kr^{++}$-Ionen durch ionisierende Umladungsstöße.*
*a) $Ar^+ + Kr$: $E_{kl}$: -o- 399eV, —o— 495eV.*
*b) $Ne^+ + Kr$: $E_{kl}$: -▼- 101eV, -x- 245eV, -o- 397eV.*

Wirkungsquerschnitte dargestellt. Dabei zeigt sich im System $Ar^+$ + Kr ein ähnliches Verhalten wie zuvor bei der Bildung von $Kr^+$: große Streuwinkel im Schwerpunktsystem sind innerhalb der rückwärtsgestreuten Ionen bevorzugt, d. h. kleine Stoßparameter führen verstärkt zur zusätzlichen Ionisierung. Im System $Ne^+$ + Kr sieht man, daß bei Herabsetzung der Stoßenergie die Bedeutung der zentralen Stöße ($\theta = 0^o$, $\chi = 180^o$) abnimmt; das Maximum im differentiellen Wirkungsquerschnitt verschiebt sich zu größeren Laborwinkeln.

Da die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit von $Kr^{++}$-Ionen gegenüber $Kr^+$-Ionen im Experiment nicht bekannt ist, können keine absoluten differentiellen Wirkungsquerschnitte angegeben werden. Nimmt man die gleiche Nachweisempfindlichkeit für $Kr^+$ und $Kr^{++}$ an, so ergeben sich Werte zwischen 10 % und 40 % der entsprechenden reinen Umladungsquerschnitte.

Um die Bedeutung dieser ionisierenden Umladungsstöße bei niedrigen Energien zu zeigen, wurde in Fig. 50 die Energie-

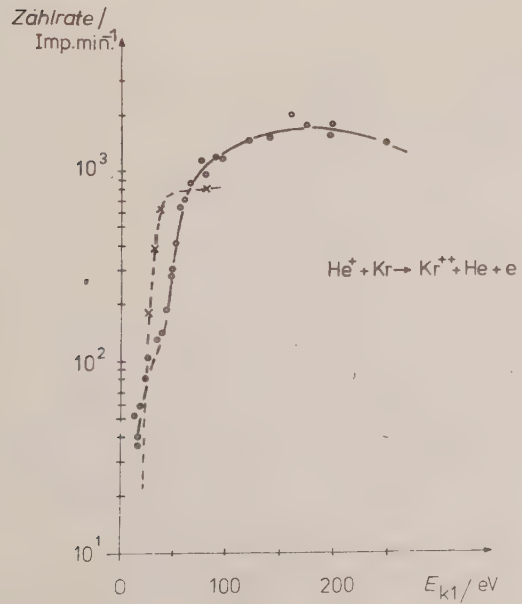



Fig. 50:
*Energieabhängigkeit der $Kr^{++}$-Zählrate im System $He^+$+Kr unter $\theta = 0^o$: —o— eigene Messungen; -x- experimentelle Kurve von Maier II (Ref. 67).*

abhängigkeit der $Kr^{++}$-Zählrate für das System $He^{+}$ + Kr aufgetragen. Gemessen wurde unter einem Laborwinkel $\theta$ von $0^{o}$. Oberhalb der Schwellenenergie ( ≈ 13 eV) setzt ein steiler Anstieg der Zählrate ein, so daß bei Stoßenergien von ≈ 100 eV bereits beachtliche Wirkungsquerschnitte erreicht werden. Fig. 50 zeigt außerdem eine Meßkurve von Maier II (Ref. 67), die erhalten wurde durch Aufsammeln der $Kr^{++}$-Ionen in einem Laborwinkelbereich von $0^{o}$ bis $30^{o}$. Die Meßkurve von Maier II ergibt zwischen 50 und 100 eV einen Wert für $\sigma$ von $2 - 3 \cdot 10^{-17}$ $cm^{2}$, wobei die Unsicherheit mit einem Faktor 3 angegeben wird. Der Anstieg der eigenen Kurve verläuft flacher, was durch die unterschiedlichen Winkelbereiche in beiden Messungen hervorgerufen werden kann. Beide Messungen unterstreichen jedoch die Bedeutung dieser ionisierenden Umladungsstöße schon knapp oberhalb der notwendigen Mindestenergie.

## 7. Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Apparatur zur Messung differentieller Wirkungsquerschnitte für Umladungsprozesse bei Stoßenergien zwischen 10 eV und 500 eV aufgebaut. Die gebildeten Sekundärionen sollten bezüglich Winkel, Energie und Masse analysiert werden. Die verschiedenen Analysatoreinheiten wurden mit bereits bekannten Reaktionen getestet, wobei sich eine Übereinstimmung mit den Messungen anderer Autoren ergab. Untersucht wurden Einelektronen-Umladungsprozesse sowie ionisierende Umladungsreaktionen beim Stoß von $He^+$, $Ne^+$, $Ar^+$-Ionen mit dem Edelgas Kr. Im einzelnen können folgende Ergebnisse festgehalten werden:

1) Im niederenergetischen Bereich wird ein nennenswerter Anteil der Umladungsionen mit einem merklichen Impuls im Laborsystem gebildet (bis zu 30 %). Diese hochenergetischen Ionen entstehen durch "Rückwärtsstreuung" im Schwerpunktssystem, d. h. sie resultieren aus Stößen mit relativ kleinen Stoßparametern.

2) Die meisten dieser schnellen Sekundärionen werden über endotherme Reaktionskanäle gebildet. Sowohl die $Kr^+$-Ionen als auch zum Teil die neutralisierten Projektile befinden sich nach dem Stoß in elektronisch angeregten Zuständen. Besonders wahrscheinlich ist die Bildung von $Kr^+$-Ionen in den ersten angeregten Zuständen.

3) Die hier durchgeführten Experimente lassen verstehen, daß die Messungen von totalen Umladungsquerschnitten - speziell in dem System ($Ar^+$ + Kr) - keinen Hinweis auf die endothermen Reaktionskanäle gaben, da in der dort verwendeten Methode nur die langsamen Ionen aufgesammelt werden.

4) Gleichzeitig folgt hieraus, daß jene Meßmethoden, die allein die geringe kinetische Energie der Umladungsionen ausnutzen, nicht notwendigerweise die totalen Umladungswirkungsquerschnitte liefern.

5) Im System $Ar^+$ + Kr kann das gefundene Verhalten mit dem Modell der Kurvenkreuzungen beschrieben werden. Nähern sich zwei Potentialkurven bei kleinen Kernabständen stark an, so erfolgt bei kleinen Stoßparametern ein Umladungsstoß mit großer Wahrscheinlichkeit. Dadurch ist auch der hohe Impulsübertrag beim Stoß verständlich.

6) Neben dem Austausch eines Elektrons sind oberhalb der entsprechenden Schwellenenergien auch Stöße mit gleichzeitiger Umladung und Ionisation von Bedeutung. Sie weisen einen steilen Anstieg oberhalb der energetischen Schwelle auf.

## 8. Anhang

### Stoßinduzierte Dissoziation von molekularen Edelgasionen

Eine Analyse des Primärstrahls hatte gezeigt, daß neben den in Tab. 2 aufgeführten Verunreinigungen auch ein geringer Anteil von molekularen Edelgasionen im Strahl vorhanden war. Mit Hilfe der Analysatoreinheit konnten die beim Stoß gebildeten Dissoziationsprodukte hinsichtlich Energie und Winkel untersucht werden. Die stoßinduzierte Dissoziation läßt sich folgendermaßen beschreiben:

$$X_2^+ + Y \rightarrow X^+ + X + Y, \text{ mit } X_2 = He_2, Ne_2, Ar_2 \quad Y = Ne \text{ bzw. } Kr. \qquad (54)$$

Die gebildeten $X^+$-Ionen lassen sich von der großen Anzahl der primären $X^+$-Ionen, die den Hauptanteil des Primärstrahls ausmachen, durch die unterschiedliche kinetische Energie trennen. In Fig. 51 ist die Energieverteilung dissoziierter

Fig. 51: *Energieverteilung der $Ar^+$-Ionen nach der Dissoziation von $Ar_2^+$-Ionen im Stoß mit Kr. $\theta = 4^o$; $E_{kl} = 398$ eV.*

$Ar^+$-Ionen nach dem Stoß mit Kr für $\theta = 4^o$ und $E_{kl} = 398$ eV dargestellt. Dissoziationsprodukte werden nur im Winkelbereich um $0^o$ gebildet, sie besitzen ungefähr die halbe Primärenergie, und ihre Energieverteilung ist gegenüber dem Primärstrahl um den Faktor 2 bis 3 verbreitert.

Man kann versuchen, die Resultate mit einem einfachen Zweistufen-Modell zu beschreiben. Im ersten Schritt soll durch einen inelastischen Stoß ein angeregtes $X_2^{+*}$-Molekülion gebildet werden, das anschließend in die beiden gleich schweren Teilchen X und $X^+$ dissoziiert. Auf diese Weise kann man versuchen, Aussagen über die Potentiale der Molekülionen zu erhalten. Gehen wir von folgendem schematischen Potentialmodell aus:

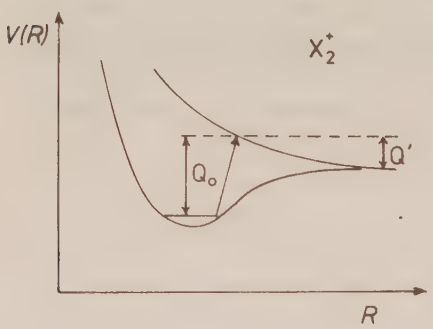



Fig. 52: *Schematischer Potentialverlauf des Molekülions* $X_2^+$.

Zunächst wird im inelastischen Stoß die Energie $Q_o$ in innere Energie überführt (von einer Anregung des Targets soll abgesehen werden). Die Energie Q' wird in Form von kinetischer Energie anschließend auf die beiden Teilchen X und $X^+$ verteilt. Dieses einfache Modell wurde auch von Bailey (Ref. 69) zur Beschreibung der Stoßdissoziation von $D_2^+$-Ionen an Ar und $N_2$ herangezogen.

Bezeichnen wir die kinetische Energie des angeregten $X_2^{+*}$-Ions

nach dem inelastischen Stoß mit $E_k^*$, so gilt analog zu Gl. (38) in Kap. 2.4.:

$$E_k^* = \frac{m_1^2}{(m_1 + m_2)^2} E_{kl} \left(\cos\vartheta \pm \{\frac{1}{\gamma_4^2} - \sin^2\vartheta\}^{1/2}\right)^2 \qquad (55)$$

($m_1$ = Masse von $X_2^+$, $m_2$ = Masse des Targets, $\vartheta$ = Streuwinkel im Laborsystem).

Lösen wir für $\vartheta = 0^o$ die Gleichung nach $Q_o$ auf, so erhalten wir:

$$Q_o = (1 + \frac{m_1}{m_2}) E_k^* - (1 - \frac{m_1}{m_2}) E_{kl} - 2\frac{m_1}{m_2}\{E_{kl} E_k^*\}^{1/2}. \qquad (56)$$

Zur weiteren experimentellen Auswertung muß $E_k^*$ durch die kinetische Energie der dissoziierten $X^+$-Ionen, $E_k(X^+)$, ersetzt werden. Für $\vartheta = 0^o$ gilt folgende Beziehung:

$$E_k(X^+) = \frac{1}{2} (E_k^* + Q') \pm \{E_k^* Q'\}^{1/2} . \qquad (57)$$

Das positive Vorzeichen entspricht der "Vorwärtsdissoziation" im Schwerpunktsystem, das negative Vorzeichen der "Rückwärtsdissoziation" (Richtung des Atomions).

Messen wir die Energieverteilung der Dissoziationsprodukte unter $\vartheta = 0^o$, so erwarten wir zwei Ionengruppen unterschiedlicher Energie. Setzt man isotrope Dissoziation im Schwerpunktsystem voraus, so sollten beide Gruppen die gleiche Zählrate aufweisen. Ist die Größe Q' jedoch sehr klein gegenüber $E_k^*$, so wird infolge der endlichen Winkelauflösung ein verbreiterter Peak bei $E_k(X^+) \approx 1/2\ E_k^*$ entstehen. Die Verbreiterung der Ionenverteilung wird neben Q' auch durch $E_k^*$, d. h. die Größe $Q_o$ sowie einen von $\vartheta = 0^o$ etwas abweichenden Nachweiswinkel $\vartheta'$ hervorgerufen, der ebenfalls in den Nachweiswinkelbereich hineinfällt.

Um eine Information über Q' zu erlangen, nehmen wir den ungünstigsten Fall an, daß die Verbreiterung der Verteilung allein durch Q' hervorgerufen wird. Es gilt dann näherungsweise

$$\Delta E \approx 2\{E_k^* \, Q'\}^{1/2} \rightarrow Q' \approx \frac{(\Delta E)^2}{4 \, E_k^*} \quad , \qquad (58)$$

wobei $\Delta E$ die Halbwertsbreite der Energieverteilung bedeutet. Nehmen wir weiter für $Q_o$ realistische Werte zwischen O und - 30 eV an und berechnen hierfür nach Gl. (55) $E_k^*$, so ergeben sich nach Gl. (58) in allen drei Systemen sehr niedrige Werte von Q'. In Tabelle 5 sind die entsprechenden Ergebnisse zusammengestellt:

| System | $E_{kl}$/eV | $\Delta E$/eV | Q'/eV bei $Q_o$=0eV | Q'/eV bei $Q_o$=-30eV | $E_k(X^+)$/eV |
|---|---|---|---|---|---|
| $He_2^+$+Ne | 396,2 | 10 | 0,063 | 0,068 | 197,0 |
| | 291,8 | 9 | 0,069 | 0,077 | 145,1 |
| $Ne_2^+$+Kr | 398,2 | 10 | 0,063 | 0,068 | 198,3 |
| $Ar_2^+$+Kr | 107,8 | 5,5 | 0,07 | 0,10 | 53,4 |

Tabelle 6: *Zusammenstellung der Größen $\Delta E$, $E_k(X^+)$ sowie Q' (berechnet nach Gl. (58) für $Q_o$ = 0 bzw. - 30 eV) bei der stoßinduzierten Dissoziation von $He_2^+$, $Ne_2^+$ und $Ar_2^+$.*

Tatsächlich wird Q' aus den bereits erwähnten Gründen noch kleinere Werte als die oben angegebenen annehmen. Dieser Befund bedeutet, wenn man das Potentialschema in Fig. 52 aufrechterhält, daß entweder die obere Potentialkurve in Fig. 52 flacher verläuft und im Übergangsbereich bereits den asymptotischen Wert erreicht hat, oder daß die stoßinduzierte Dissoziation im vorliegenden Energiebereich keinen Franck-Condon-Übergang darstellt. Die obere Potentialkurve würde dann bei solch großen Kernabständen erreicht,

daß nur noch wenig kinetische Energie bei der Dissoziation frei wird.

Mit der Vereinfachung $E_k(X^+) \approx 1/2\ E_k^*$ läßt sich für $\vartheta = 0$ aus der Beziehung (56) leicht $Q_o$ bestimmen:

$$Q_o = (1+\frac{m_1}{m_2})2E_k(X^+) - (1-\frac{m_1}{m_2})E_{k1} - 2\frac{m_1}{m_2}\{2E_{k1}\ E_k(X^+)\}^{1/2} \quad . \quad (59)$$

Die $Q_o$-Werte geben minimale Werte für die Topftiefen bzw. die Dissoziationsenergien der molekularen Edelgasionen an. In Tabelle 7 werden die eigenen Werte mit den Ergebnissen anderer experimenteller und theoretischer Arbeiten (s. Ref. 70) verglichen.

| System | $-Q_o$/eV | (Ref. 71) | (Ref. 72) | (Ref. 73) | (Ref. 70) |
|---|---|---|---|---|---|
| $He_2^+$ | $\geq 1,93$ | $\geq 1,3$ | 2,06 | 2,07 | 2,23 |
| $Ne_2^+$ | $\geq 1,67$ | $\geq 0,69$ | 0,33-0,71 | 1,65 | 1,1 |
| $Ar_2^+$ | $\geq 1,04$ | $\geq 1,08$ | 0,0035 | 1,25 | 1,4 |

Tabelle 7: *Zusammenstellung der Dissoziationsenergien von $He_2^+$, $Ne_2^+$ und $Ar_2^+$. In Spalte 2 werden die eigenen Werte angegeben. Die Werte in Spalte 3 - 6 wurden Ref. 70 entnommen.*

Die Übereinstimmung mit anderen Messungen ist überraschend gut. Allerdings ist zu berücksichtigen, daß der Fehler der eigenen Werte bei ungefähr 0,5 eV liegt, welcher durch die hohen verwendeten Energien bedingt ist. Soll die Genauigkeit vergrößert werden, so müssen entsprechende Messungen bei niedrigen Stoßenergien durchgeführt werden, was dann jedoch eine primäre Massenselektion, die bei den Umladungsmessungen nicht notwendig war, unumgänglich macht.

Die Winkelverteilung der $Ne^+$-Ionen nach der Dissoziation von $Ne_2^+$ an Kr ist in Fig. 53 dargestellt. Da Q' nur sehr kleine Werte annimmt, ist die Verteilung identisch mit dem

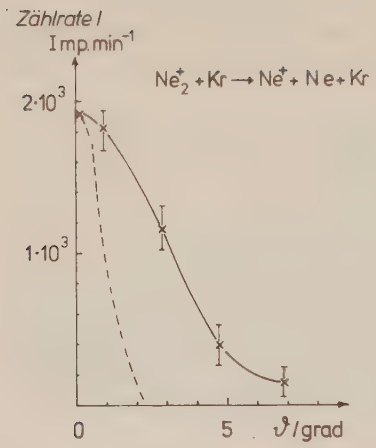



Fig. 53: *Winkelverteilung der Dissoziationsprodukte $Ne^+$ nach dem Stoß von $Ne_2^+$ mit Kr. $E_{kl}$ = 398 eV (--- Winkelverteilung der primären $Ar_2^+$-Ionen).*

Winkelverhalten der angeregten $Ne_2^{+*}$-Ionen nach dem inelastischen Stoß. Es zeigt sich, daß dieser Stoßprozeß, der zur anschließenden Dissoziation führt, bevorzugt in Vorwärtsrichtung im Laborsystem erfolgt.

Referenzen


1) Henderson G.H., Proc.Roy.Soc. A102, 496 (1922)
2) Rutherford E., PhilMag. 47, 277 (1924)
3) Kapitza P., Proc.Roy.Soc. A106, 602 (1924)
4) Kallmann H., Rosen B., Z. Phys. 64, 806 (1930)
5) Fedorenko N.V., Zh.tekh.Fiz. 24, 769 u. 2113 (1954)
6) Ziemba F.P., Lockwood G.J., Morgan G.H., Everhart E., Phys.Rev. 118, 1552 (1960)
7) Fedorenko N.V., Sov. Phys. USPEKHI 2, 526 (1959-1960)
8) Koopman D.W., Phys.Rev. 154, 79 (1967)
9) Mahadevan P., Magnuson G.D., Phys.Rev. 171, 103 (1968)
10) Schlumbohm H., Z.Naturforsch. 24, 1716 (1969)
11) Fite W.L., Smith A.C.H., Stebbings R.F., Proc.Phys.Soc. (London) A268, 527 (1962)
12) Belyaev V.A., Brezhnev B.G., Erastov E.M., Sov.Phys.-JETP 25, 777 (1967)
13) Champion R.L., Doverspike L.D., J.Phys.B, 2, 1353 (1969)
14) De Heer F.J., Luyken B.F., Jaecks D., Wolterbeek Muller L., Physica 41, 588 (1969)
15) Schlumbohm H., Z.Naturforsch. 23a, 776 u. 970 (1968)
16) Lipeless M., Novick R., Tolk N., Phys.Rev.Lett., 15, 815 (1965)
17) Herbst D., Diplomarbeit, Bochum (1974)
18) Schrey H., Diplomarbeit, Bochum (1975)
19) Hasted J.B., "Physics of Atomic Collisions", 2 London Butterworth (1972)
20) Bates D.R., "Atomic and Molecular Processes", (1962)
21) Thomas L.H., Proc.Roy.Soc. (London) 114, 561 (1927)
22) Gryzinski M., Phys.Rev. 138, A336 (1965)
23) Bransden B.H., Cheshire I.M., Proc.Phys.Soc. (London) 81, 820 (1963)
24) Cheshire I.M., Proc.Phys.Soc. (London) 84, 89 (1964)
25) Landau L.D., Lifschitz E.M., "Lehrbuch der Theoretischen Physik I", Akademie-Verlag Berlin (1964)
26) Demkov U.H., Ann.Leningr.Univ. 146, 74 (1952)

27) Massey H.S.W., Rep.Proc.Phys. 12, 248 (1949)
28) s. Artikel von Hasted in "Atomic and Molecular Processes" von Bates (1962), S. 714: Der Abfall des Wirkungsquerschnittes zu kleinen Energien hin verläuft exponentiell: $Q \sim \exp(-a|Q|/4hv)$.
29) Mott N.F., Massey H.S.W., "The Theory of Atomic Collisions", 3. Ausgabe, Oxford, Clarendon Press (1965)
30) Mapleton R.A., "Theory of Charge Exchange", Wiley & Sons (1972)
31) Landau L.D., Phys.Z.Sowjetunion, 2, 46 (1932)
32) Zener C., Proc.Roy.Soc., A137, 696 (1932)
33) Stückelberg E.C.G., Helv.Physica Acta 5, 369 (1932)
34) Bates D.R., Proc.Roy.Soc., A257, 22 (1960)
35) Heinrichs J., Phys.Rev. 176, 141 (1968)
36) Bates D.R., "Quantum Theory", Academic Press (1961)
37) Abramowitz M., Stegun, I.A., Handbook of mathematical functions
38) Menzinger M., Wahlin L., Rev.Sci.Instr. 40, 102 (1969)
39) Pierce J.R., "Theory and design of electron beams", Von Nostrand, New York (1949)
40) Ardenne von, M., "Tabellen zur angewandten Physik", Bd.1, VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin (1962)
41) Hasted J.B., in Bates D.R., "Atomic and Molecular Processes", S. 705 (1964)
42) Willmore A.P.J., Thesis, University of London (1955)
43) Mc Gowan J.W., Kerwin L., Can.J.Phys. 41, 1535 (1963)
44) Hagstrum H.D., Phys.Rev. 104, 309 (1956)
45) Lamb W.E., Skinner M., Phys.Rev. 78, 539 (1950)
46) Matsuda H., Rev.Sci.Instr. 32, 850 (1961)
47) Hughes A., Rojanski V., Phys.Rev. 34, 284 (1929)
48) Niedermeyer H., "Ein elekstrostatischer Analysator zur...", IPP / 1 / 66 (1967)
49) Paul W., Reinhard H.P., v.Zahn U., Z.f.Phys. 152, 143 (1958)
50) Holme A.E., Thatcher W.J., Leck J.H., J.Phys.E., Scientific Instr. 5, (1972)
51) Marmet P., J. of Vacuum Science a. Technology, 8, 262 (1971)
52) Aberth W., Lorents D.C., Phys.Rev., Vol.144, 109 (1966)

53) Rudd M.E., Lang D.V., Proceedings of the IV. Int. Conf. on the Physics of Electronic and Atomic Collisions (1965)
54) Lorents D.C., Aberth W., Phys.Rev. 139, A 1017 (1965)
55) Marchi R.P., Smith F.T., Phys.Rev. 139, A 1025 (1965)
56) Mulliken R.S., Phys.Rev. 136, A 962 (1964)
57) Henglein A., Lacmann K., Jacobs G., Ber.Bunsenges. Phys.Chem. 69, 279 (1965)
58) Henglein A., in "Molecular Beams and Reaction Kinetics", v. Ch. Schlier, Academic Press, New York, London (1970)
59) Hierl P.M., Herman Z., Wolfgang R., J.Chem.Phys. 53, 660 (1970)
60) "Handbook of Chemistry and Physics", 52. Edition (1971-72)
61) Moore Ch.E., Atomic Energy Levels, Vol. I und II, Circular of the National Bureau of Standards 467 (1971)
62) Herzberg G., "Atomic Spectra and Atomic Structure", Von Nostranel-Company (1968)
63) Jaecks D., De Heer F.J., Salop A., Physica 36, 606 (1967)
64) Siegel M.W., Chen Y.H., Boring J.W., Phys.Rev.Lett. 28, 465 (1972)
65) Private Mitteilung der Herstellerfirma "Balzers". Ungefähre Angabe: Abnahme der Transmission um Faktor 2 über dem Massenbereich 0 - 100.
66) Smith A.B., "Notes on the performence..." EMI, DOCUMENT, REF.No. R/P034
67) Maier W.B.,II, Phys.Rev. A5, 1256 (1972)
68) Beck D., "Collision Mechanics" in "Molecular Beams and Reaction Kinetics", Edited by Ch. Schlier, Academic Press (1970)
69) Champion R.L., Doverspike L.D., Bailey T.L., J.Chem.Phys. 45, 4377 (1966)
70) Mulliken R.S., J.Chem.Phys. 52, 5170 (1970)
71) Munson M.S.B., Franklin J.L., Field F.H., J.Phys.Chem. 67, 1542 (1963), Ergebnisse aus Elektronenstoßexperimenten
72) Mason E.A., Vanderslice J.T., J.Chem.Phys. 29, 361 (1958), 30, 599 (1959), 36, 1103 (1962). Aus Ionenstreudaten.
73) Gilbert T.L., Wahl A.C., unveröffentlichte theoretische Berechnungen.

Lebenslauf

Am 20. 3. 1944 wurde ich als Sohn des Prokuristen Adolf Huber und seiner Frau Gertrud, geb. Wenz in Eggenstein geboren.

Nach dem Besuch der Volksschule in den Jahren 1950 bis 1954 wechselte ich zum Albert-Schweitzer-Gymnasium in Hamburg, wo ich 1963 die Reifeprüfung ablegte.

Im Sommersemester 1963 begann ich an der Universität Hamburg mit dem Studium der Physik und schloß es dort im Sommer 1969 mit dem Diplom ab. Seit September 1969 bin ich am Institut für Experimentalphysik II der Ruhr-Universität Bochum als Wissenschaftlicher Assistent tätig.